

Série A, N° 3292

N° d'ordre :

4164

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Charles CASSIGNOL

PREMIÈRE THÈSE :

La contagion isotopique dans les séparateurs électromagnétiques d'isotopes

DEUXIÈME THÈSE :

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 3 Juin 1959 devant la Commission d'examen

MM. F. PERRIN

Président

A. KASTLER

F. BERTEIN

Examineurs

Série A, N° 3292
N° d'ordre :
4164

THÈSES

PRÉSENTÉES

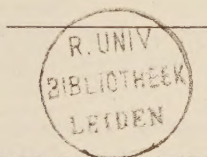
A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Charles CASSIGNOL



PREMIÈRE THÈSE :

La contagion isotopique dans les séparateurs électromagnétiques d'isotopes

DEUXIÈME THÈSE :

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 3 Juin 1959 devant la Commission d'examen

MM. F. PERRIN

A. KASTLER

F. BERTEIN

Président

Examineurs

PROFESSEURS

DOYEN J. PERES

G. JULIA	T Analyse sup. & Algèbre sup.	NORMANT	T Chimie organique
FOCH	T Mécan. physique et expérimentale	BENARD	T Chimie (P. C. B.)
DE BROGLIE	T Théories physiques	BUVAT	T Botanique (E. N. S.)
PRENANT	T Anatomie et Histol. comparées	DUGUE	T Statistiques mathém.
PERES	T Mécan. des Fluides et applications	GELOSO	T Chimie (S. P. C. N.)
M. CURIE	T Physique (S. P. C. N.)	SOULAIRAC	T Psychophysiologie
BARRABE	T Géol. struct. et Géol. appliquée	ULRICH	T Physiologie Végétale
J. BOURCART	T Géogr. physique et Géol. dynamique	MARECHAL	T Optique théorique et appliquée
PLANTEFOL	T Botanique	KIRRMANN	T Théories chimiques
GRASSE	T Evolution des êtres organisés	CHADEFAUD	Botanique
PREVOST	T Chimie organique	DESTRIAU	T Physique (M. P. C.)
BOULIGAND	T Application de l'analyse à la Géométrie	Mlle LE BRETON	T Physiol. générale
CHAUDRON	T Chimie appliquée	SALEM	T Mathématiques Générales
WYART	T Minéralogie	LELONG	T Mathématiques Générales
TEISSIER	T Zoologie	DEVILLERS	Anatomie et Histologie comparées
MANGENOT	T Biol. Végétale	EHRESMANN	T Topologie algébrique
P. AUGER	T Physique quantique et relativité	FRANCON	Physique (S. P. C. N.)
MONNIER	T Physiol. générale	GLANGEAUD	T Géogr. physique et Géol. dynamique
PIVETEAU	T Paléontologie	GODEMENT	T Mathématiques (M. P. C.)
ROCARD	T Physique (E. N. S.)	PISOT	T Calcul des Probabilités
H. CARTAN	T Mathématiques (E. N. S.)	ROCH E.	T Géologie
LAFFITTE	T Chimie générale	SCHATZMANN	Astrophysique
FAVARD	T Géométrie supérieure	TERMIER	T Paléontologie stratigraphique.
COULOMB	T Physique du Globe	ZAMANSKY	T Mathématiques Générales
Mlle COUSIN	T Biol. animale (S. P. C. N.)	LENNUIER	Physique (M. G. P.)
CHRETIEN	T Chimie minérale	RIZET	Génétique
P. DRACH	T Zoologie	ROUTHIER	Géologie Appliquée
KASTLER	T Physique (E. N. S.)	Mme TONNELAT	T Phys. théor.
EPHRUSSI	T Génétique	DIXMIER	Mathématiques (M. P. C.)
WURMSER	T Biologie physico-chimique	SOUCHAY	Chimie générale
RIVIERE	T Géologie (S. P. C. N.)	AIGRAIN	T Electrotechnique
GAUTHERET	T Biol. végétale (P. C. B.)	BRUSSET	Chimie minérale
LUCAS	T Recherches physiques	M. LEVY	Physique théorique
A. THOMAS	T Biologie cellulaire	Mme CHAIX	Chimie biologique
ARNULF	T Optique appliquée	Mme HUREL-PY	Biol. Végétale (P. C. B.)
M. MORAND	T Enseignement de Physique	PIAUX	Chimie (P. C. B.)
SOLEILLET	T Physique	BRUN	Mécanique expérimentale des fluides
FORTIER	T Mécanique exper. des fluides	LEDERER	T Chimie des substances organiques naturelles
DANJON	T Astronomie	Mme DUBREIL	T Mathématiques
LAPORTE	T Physique générale et Radioactivité	Mme LELONG	T Mathématiques (E. N. S.)
JANET	T Mécanique analytique et Mécanique céleste	BELLAIR	T Géologie (S. P. C. N.)
PETIT	T Biologie maritime	COTTE	T Physique (M. P. C.)
QUENEY	T Météorologie et dynamique atmosphérique	DUBOIS J. E.	T Chimie (S. P. C. N.)
GALLIEN	T Embryologie	LAMOTTE	Zoologie (E. N. S.)
EICHHORN	T Biologie Végétale (S. P. C. N.)	LE ROLLAND	Méc. des fluides
DE CUGNAC	T Biologie Végétale (S. P. C. N.)	MICHEL André	T Chimie (S. P. C. N.)
Mlle CAUCHOIS	T Chimie Physique	OLMER	T Energétique Générale
THELLIER	T Physique du Globe	ROUAULT	T Physique Générale
L'HERITIER	T Génétique	GAUTHIER	T Méc. appliquée
GRIVET	T Radioélectricité	BARCHEWITZ	Chimie Physique
PONCIN	T Mécanique Générale	BROSSEL	Physique atomique
DUBREIL	T Arithmétique et théorie des nombres	BUSER	Biologie animale (P. C. B.)
QUELET	T Chimie organique	CAMUS	Biol. Vég. (P. C. B.)
CAGNIARD	T Géophysique appliquée	CASTAING	Physique Générale
CHAMPETIER	T Chimie macromoléculaire	CURIEN	Minéralogie et cristallographie
CUVILLIER	T Géol. structurale et Géol. appliquée	MOYSE	Physiologie Végétale
JUNG	T Pétrographie	NOIROT	Evolution des êtres organisés
TRILLAT	T Microscopie et diffraction électronique	PANNETIER	Chimie (S. P. C. N.)
WIEMANN	T Chimie organique et structurale	POSSOMPES	Biologie Animale (P. C. B.)
JACQUINOT	T Spectroscopie et physique céleste	PULLMANN	Chimie Théorique
VASSY	T Physique de l'Atmosphère	TEILLAC	Physique Nucléaire et Radioactivité
DESTOUCHES	T Théories physiques	TONNELAT	Biol. physico-chimique
M. PRUVOST	T Géologie	VILLE	Econométrie
AMIEL	T Chimie générale (P. C. B.)	WILLEMAR	Chimie (P. C. B.)
HOCART	T Minéralogie	DODE	T Chimie
J. P. MATHIEU	T Physique (P. C. B.)	FREYMAN	T Physique (S. P. C. N.)
COUTEAUX	T Biol. Animale (P. C. B.)	GUINOCHET	T Biol. Vég. (ORSAY)
MAY	T Biol. Animale (P. C. B.)	ROLLET	T Chimie (P. C. B.)
CHOQUET	T Calcul différentiel et Intégral	Mlle JOSIEN	T Chimie (P. C. B.)
FELDMANN	T Biologie (P. C. B.)	CHEVALLEY	T Géométrie Algébrique et théorie des groupes
GUINIER	T Physique des solides		
JOST	T Physiol. comparée	ARNOULT	T Physique (Orsay)
FORTET	T Calcul des probabilités	CHAPELLE	T Physique (Orsay)
SCHWARTZ	T Calcul différentiel et Intégral	DELANGE	T Mathématiques (Orsay)
CHOUARD	T Physiologie Végétale	DENY	T Mathématiques (Orsay)
MALAVARD	T Aviation	GERMAIN P.	T Mécan. théor. des fluides.
BRELOT	T Calcul différentiel	LUCAS G.	T Géologie

INTRODUCTION

La séparation électromagnétique des isotopes a pris un essor considérable entre les années 1941 et 1945, sous l'impulsion de l'effort de guerre américain (1). Bien qu'une méthode différente ait été, en fin de compte, préférée pour la séparation de grandes quantités d'uranium-235, la somme de travail dépensée et les progrès accomplis ont permis de poser les bases modernes de la séparation électromagnétique des isotopes en quantités pondérables, pour toutes les espèces chimiques.

La nécessité d'obtenir très rapidement un résultat pratique a conditionné d'une manière très particulière l'organisation de la recherche. L'empirisme a eu une large part dans la détermination des schémas expérimentaux viables et dans la mise au point des prototypes. Les réalisations datant de cette période sont encore parfaitement valables et, pour une part, sont actuellement en service aux Etablissements d'Oak Ridge sans avoir subi de modifications autres que de détail.

Par contre, il apparaît que le travail de recherche en profondeur, moins immédiatement rentable, a été d'un apport secondaire. Ni les travaux sur la décharge dans les gaz en présence d'un champ magnétique (2), ni l'exploration des propriétés physiques des faisceaux d'ions (3) n'ont abouti à une compréhension claire des phénomènes intervenant dans les sources d'ions ou au cours du trajet des ions dans le champ magnétique.

Apparemment, l'exploitation routinière des séparateurs d'isotopes, soit pour la production du seul uranium-235, soit pour l'enrichissement de tous les nuclides, pouvait s'accommoder de lacunes d'interprétation importantes.

Les comptes rendus des recherches effectuées pendant la guerre restèrent longtemps classifiés. De ce fait, dans l'après-guerre, quand on décida dans plusieurs pays de construire des séparateurs électromagnétiques pour la recherche scientifique, le travail préliminaire dut être repris sans pouvoir tirer profit de l'expérience acquise aux U.S.A. Cependant, sauf dans de rares cas particuliers, les bases saines d'instrumentation furent déterminées sans erreur et on ne s'intéressa qu'aux appareils à champs constants dans le temps. L'après-guerre vit également l'application à la séparation en quantités pondérables des appareils à secteur magnétique (4, 5).

Si, sur le plan scientifique, l'apport des documents déclassifiés restait modeste, par contre, la mise dans le commerce, à peu près concomitante, d'isotopes enrichis, eut une importance incontestable. En effet, étant donnée la grande concentration industrielle des Etablissements d'Oak Ridge, la production routinière des appareils isolés et à faible débit était condamnée comme étant trop onéreuse. Il convenait donc, soit de rechercher des applications nouvelles, soit de cesser l'exploitation des petits séparateurs.

En fait, cette situation économique ne s'établit que progressivement. Pendant quelque temps, certains nuclides demeurèrent classifiés ou temporairement impossibles à se procurer ou insuffisamment enrichis, ce qui motiva la prolongation de l'activité des séparateurs dispersés. Cependant, des applications nouvelles étaient faites sans attendre les signes avant-coureurs de la modification de la conjoncture économique. C'est ainsi, entre autres exemples, que M. Bernas, en 1953, après avoir conçu et réalisé le séparateur de Saclay (4), l'employa à l'étude des radio-éléments artificiels, et fit notamment, par une méthode aussi inédite qu'élégante, l'attribution de masse à un rayonnement de 45 minutes de période du technétium (6).

La voie que j'ai suivie après le départ de M. Bernas a été différente. Elle a consisté, au début, à obtenir, par une méthode semi-empirique pratiquement inemployée en optique corpusculaire, des nuclides de très grande pureté isotopique (7), ensuite à utiliser les résultats obtenus et le matériel correspondant pour tenter d'élucider, au moins qualitativement, les mécanismes principaux de contagion isotopique.

J'ai eu, au cours de cette recherche, l'occasion de mesurer mon ignorance, et également la satisfaction de constater que mes préoccupations concernant la contagion isotopique n'étaient pas vaines, quand vers la fin de l'année 1955, le Commissariat à l'Energie Atomique envisagea de construire un séparateur pour les transuraniens ; les valeurs numériques des facteurs d'enrichissement pour des masses adjacentes dans le haut de l'échelle étaient imposées à priori et inhabituellement élevées.

Le même problème s'était posé quelque temps auparavant en Grande-Bretagne et la façon dont les spécialistes de l'A. E. R. E. l'ont résolu (5) est très révélatrice du manque général de connaissances fondamentales sur le fonctionnement d'un séparateur. Si les performances du Séparateur d'Harwell "Hermès" sont remarquables (8), la détermination de ses caractéristiques a été faite en prenant de très grands risques.

En ce qui concerne le séparateur à transuraniens du C. E. A. (dont le projet fut d'ailleurs abandonné quelque temps après), en fonction de résultats récemment acquis, je fus en mesure de proposer un dispositif à deux étages, chaque étage étant à peu près équivalent au séparateur d'Harwell, et la performance finale estimée de façon systématiquement pessimiste en fonction de la performance de ce dernier appareil, performance qui n'était pas encore connue.

Le point de départ et le cheminement du raisonnement n'étaient guère satisfaisants. Il n'était cependant pas possible d'aller plus loin sans s'aventurer. Les résultats acquis actuellement montrent que mes estimations étaient inférieures de plusieurs ordres de grandeur aux performances d'une telle machine, que j'ai appris depuis à calculer.

Ainsi se trouvaient légitimés, même en dehors de toute application immédiate, mes recherches sur la contagion et les moyens inhabituellement puissants que j'avais commencé à mettre en oeuvre.

L'entrée en matière a consisté à consulter les catalogues d'isotopes enrichis et à tenter d'en retirer, sinon des corrélations entre des valeurs numériques de facteurs d'enrichissement, du moins quelque indication générale susceptible de donner une idée directrice. L'échec complet de cette opération eut pour résultat de me convaincre qu'il était impossible de comparer valablement, sur la seule foi de la bibliographie, des résultats enregistrés en différents endroits par des expérimentateurs différents et qu'une étude en profondeur, conduite avec continuité sur un seul appareil, était la seule manière de traiter le problème.

En ce qui concerne la partie expérimentale, il fallait prendre en considération le fait que le travail routinier de la machine de Saclay devait être perturbé le moins possible tant qu'un résultat n'était pas en vue ou une idée directrice trouvée. De ce fait, l'exploration systématique des conditions pratiques de séparation, suivie du contrôle minutieux des performances, était exclue. Pour la même raison, l'étude détaillée des spectres de masse ne pouvait être entreprise. Ces deux méthodes, au demeurant, n'étaient guère prometteuses, et la nécessité d'employer une méthode plus décisive apparaissait clairement.

Dans le double but d'accroître les performances en enrichissement du séparateur de Saclay et d'entreprendre une recherche sur la contagion isotopique, j'ai adapté à cette machine un étage dispersif supplémentaire en cascade, capable d'accepter la totalité d'un faisceau isotopique, et pourvu d'une optique aussi bonne que possible. Je n'ai fait ainsi que transposer à la séparation électromagnétique des isotopes le principe des cascades de monochromateurs, avantageusement connu en optique lumineuse, et dont les premières applications à l'optique corpusculaire (9, 10) se développaient lentement à cette époque sans susciter d'intérêt notable.

Une question se posait : le choix du principe de la deuxième sélection. Les seules solutions raisonnables étaient les sélections électrostatique et magnétique avec des champs constants dans le temps (respectivement filtres d'énergie et de quantité de mouvement). Par rapport aux mécanismes de contagion les plus plausibles à priori chaque type de post-sélection a un comportement bien déterminé. Comme ces mécanismes étaient inconnus, en nature et en poids, il était indifférent d'employer l'un ou l'autre principe. J'ai adopté la solution électrostatique pour des raisons pratiques et économiques qui sont : plus grande simplicité de construction et d'opération, poids et encombrement plus faibles, et surtout prix moins élevé. Malgré quelques analogies de forme, il ne faut pas confondre ce dispositif avec la double focalisation des spectrographes de masse à haute résolution, dont l'objet est fondamentalement différent.

La machine sur laquelle ont été faites la plupart des expériences, et qui a servi à développer le schéma de contagion isotopique, est le séparateur d'isotopes de Saclay, conçu et réalisé par M. Bernas.

C'est un secteur magnétique, symétrique, d'angle 60° , de rayon moyen 50 cm. La première partie rectiligne des trajectoires est horizontale. L'entrefer est vertical. Dans le champ magnétique, les trajectoires se recourbent vers le haut. Cette machine a, en particulier, constitué le premier étage dispersif de la cascade mixte, pièce maîtresse du présent travail.

CHAPITRE I

POSITION DU PROBLÈME

I - L'ISOTOPIE.

L'isotopie a été découverte dans les premières années du 20ème siècle, par le physicien anglais Soddy. Elle a, à cette époque, permis d'expliquer les variations de poids atomique d'éléments stables chimiquement identiques, mais provenant de chaînes de désintégration radioactive différentes, ainsi que la présence, dans une même chaîne, de termes de même nature chimique mais de propriétés radioactives différentes.

Le développement, dans les années qui suivirent cette découverte, de la méthode d'analyse électromagnétique des rayons d'électricité positive, a permis d'étendre la notion d'isotopie à tous les éléments et, en premier lieu, de formuler la loi fondamentale bien connue : les masses des atomes sont des multiples entiers de la masse de l'atome d'hydrogène.

Les progrès de la méthode mirent en évidence, par la suite, les écarts à cette loi, écarts qui, par recoupement avec les mesures d'énergie des réactions nucléaires, vérifient directement l'équivalence de la masse et de l'énergie.

La séparation électromagnétique des isotopes est une application particulière de la méthode d'analyse électromagnétique des rayons d'électricité positive.

II - PRINCIPE DE LA SEPARATION ELECTROMAGNETIQUE DES ISOTOPES.

A) Généralités.

Le principe de la séparation électromagnétique des isotopes est, comme celui de la spectrométrie de masse, fondé sur le comportement des ions positifs dans les champs électriques et magnétiques, dans une atmosphère très raréfiée. L'intensité des courants mis en oeuvre est cependant beaucoup plus considérable. De ce fait, l'existence de la charge d'espace rend inutilisables certains schémas expérimentaux employés en spectrométrie de masse (champs électriques et magnétiques croisés, champs électriques variant en fonction du temps). Les dispositifs qui ont, seuls eu des applications viables, utilisent des champs constants dans le temps agissant, en principe, sur des portions différentes des trajectoires ioniques. De plus, l'action du champ électrique est aussi localisée que possible et, dans l'espace offert aux faisceaux ioniques, qui est électriquement équipotentiel, la charge d'espace est neutralisée (11).

Un séparateur d'isotopes comprend :

- une source d'ions, maintenue à un potentiel positif constant V ;
- un système d'électrodes assurant l'extraction de la source et l'accélération homogène d'un faisceau d'ions ;
- un espace électriquement équipotentiel, dans lequel on produit un champ magnétique uniforme effectuant la sélection des ions accélérés ;
- un collecteur, où les faisceaux d'ions séparés perdent leur charge et se retransforment en atomes neutres ;
- une installation de pompage entretenant le long des trajectoires une pression suffisamment basse.

B) Cinématique des particules chargées.

Je me borne à donner la formule semi-empirique qui sert de base à la spectrométrie de masse et à la séparation électromagnétique des isotopes. On obtient simplement cette formule en éliminant la vitesse entre l'expression de la force vive et celle de la force de Lorentz :

$$MV = \lambda (BR)^2$$

La valeur de λ est $4,8 \cdot 10^{-5}$ quand M est exprimé en unités de masse atomique, V en volts, B en oersteds et R en centimètres.

C) Focalisation des angles.

Le dispositif d'accélération donne, en première approximation, un faisceau homogène en énergie et divergeant légèrement à partir de la fente de sortie des ions. Dans le dispositif connu sous le nom de "calutron", le champ magnétique est appliqué sur toute la longueur des trajectoires. La figure 1a représente les trajectoires de deux faisceaux dans un tel dispositif. Pour un faisceau donné, les trajectoires sont des cercles de même rayon. On voit que les faisceaux présentent un point de striction quand la direction moyenne de la vitesse a tourné de 180° . C'est ce que l'on appelle la focalisation des angles. C'est aux points C et C' que l'on dispose les collecteurs.

Une autre catégorie d'appareils, dont celui du C.E.A. est un exemple, est caractérisée par un mode d'application différent du champ magnétique. Ce sont les appareils dits à secteur magnétique. La source et le collecteur sont écartés du champ magnétique. Le domaine de celui-ci est un dièdre dont les faces d'entrée et de sortie sont perpendiculaires à la trajectoire ionique moyenne. On démontre que la focalisation des angles a lieu en première approximation sur la droite joignant l'origine des trajectoires au sommet du dièdre (fig. 1b).

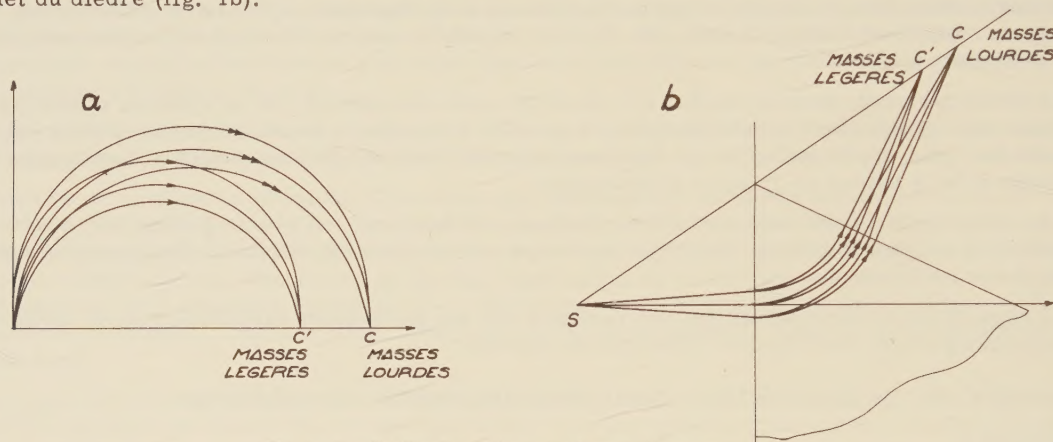


Fig. 1 - Focalisation des angles. a) calutron ; b) secteur symétrique (60°)

D) Aberration angulaire.

La focalisation des angles n'est pas parfaite, même théoriquement. Il subsiste un défaut du genre coma. Dans le cas des calutrons et des secteurs symétriques d'angle quelconque la tache d'aberration a pour largeur $R\alpha^2$, α étant le demi-angle d'ouverture du faisceau. Ce défaut limite la résolution et doit être corrigé. Dans les calutrons, on fait cette correction en rendant le champ magnétique légèrement inhomogène. Dans les appareils à secteur, on impose une courbure convenable aux frontières du champ magnétique (12).

E) Dispersion et résolution théoriques. (cas des calutrons et des secteurs symétriques).

La distance des images de deux isotopes différant d'une unité de masse atomique à la masse moyenne M est :

$$\delta = \frac{R}{M}$$

R étant le rayon de courbure des trajectoires dans le champ magnétique.

Si la largeur des images est 1, la résolution de l'appareil est :

$$M = \frac{R}{1}$$

(La résolution est la valeur de la plus grande masse complètement séparée de sa voisine).

Application numérique : $R = 50$ cm, $1 = 1$ mm. La résolution théorique de l'appareil est de 500.

Influence de la coma. Prenons $\alpha = \frac{1}{10}$ radian, ce qui est une valeur raisonnable : $R\alpha^2 = 5$ mm. La

largeur des images est $1 + R \alpha^2 = 6 \text{ mm}$. La résolution tombe à 83.

III - LA CONTAGION ISOTOPIQUE

A) Définitions.

Il résulte des considérations élémentaires qui précèdent que, si la source d'ions et le système d'accélération délivrent un faisceau bien monocinétique, si la tension d'accélération des ions et le champ magnétique défecteur sont bien constants dans le temps, si les aberrations sont bien corrigées et la charge d'espace bien compensée, enfin si le collecteur est bien en place, les faisceaux ioniques au collecteur sont complètement séparés et les produits de collection doivent être isotopiquement purs.

En réalité, il est rare d'obtenir, pour les masses adjacentes dans le haut de l'échelle, des facteurs d'enrichissement supérieurs à quelques dizaines. Je désignerai par le terme général de contagion isotopique le résultat de tous les mécanismes susceptibles d'altérer la pureté isotopique des nuclides traités dans les séparateurs électromagnétiques.

Rappelons la définition du facteur d'enrichissement. Soit A le nuclide dont on désire augmenter la teneur au moyen d'une séparation isotopique. Soit B un nuclide isotope de A ; soient a et b le nombre d'atomes de A et B présents dans une quantité donnée de charge de source ; soient a' et b' le nombre d'atomes de A et de B dans le produit de l'enrichissement de A. Le facteur d'enrichissement de A par rapport à B dans la séparation isotopique est le double rapport $a'/b' : a/b$.

On rencontre assez souvent dans la bibliographie la notion d'enrichissement d'un isotope particulier par rapport à l'ensemble des autres isotopes d'un élément. Si c et c' sont les pourcentages de l'isotope considéré avant et après application du processus d'enrichissement, le coefficient d'enrichissement correspondant est le double rapport $\frac{c'}{100-c'} : \frac{c}{100-c}$

Je ne ferai pas usage de cette notion qui n'a aucune signification physique et ne peut rendre compte de la qualité d'un isotope enrichi pour la plupart des applications, pas plus que de l'efficacité d'une opération d'enrichissement. Seule est valable la notion d'enrichissement d'un isotope par rapport à un autre, ou par rapport à plusieurs autres pris isolément et nommément désignés.

Je considère maintenant l'inverse du facteur d'enrichissement de A par rapport à B, que je définis comme le facteur de contagion de B dans A. L'emploi de cette notion facilitera l'exposé par la suite, car les facteurs de contagion jouissent de la propriété d'additivité par rapport à des mécanismes de contagion concurrents. (*)

B) Diagramme de contagion.

La première ligne du tableau ci-après porte, en regard des masses atomiques correspondantes, les abondances naturelles des isotopes du cadmium (à l'exception de ^{106}Cd et de ^{108}Cd). La deuxième ligne porte les abondances de ces mêmes isotopes dans le produit de l'enrichissement de ^{114}Cd , pratiqué dans d'assez mauvaises conditions à la fin de l'année 1953. La troisième ligne porte les rapports des lignes 2 et 1, c'est à dire, à un facteur près (et sauf pour l'isotope 114), les facteurs de contagion de tous les isotopes par rapport à celui de masse 114.

Cd	110	111	112	113	114	115	116
	12,3	12,7	24	12,3	29		7,6
	0,7	1,4	6,6	5,4	83,5		2,4
	0,057	0,11	0,275	0,44	2,9		0,31

La figure 2 représente le diagramme de contagion. En abscisses, les masses, en ordonnées, les valeurs numériques de la troisième ligne du tableau sont portées. On voit que tous les points expérimentaux, à l'exception du point 114, se répartissent assez bien sur une courbe à allure gaussienne à peu près axée sur l'ordonnée 114. Si l'on prend à priori cette ordonnée comme axe de symétrie, on peut déterminer, après une très bonne concordance, une loi gaussienne valable pour les isotopes 110, 111, 112, 113. Le point figuratif de l'isotope 116 est situé un peu au-dessus de la courbe. Le point figuratif de ^{114}Cd est franchement en dehors et au dessus. Il n'est pas nécessaire, a priori, de postuler que la loi

(*) Cette propriété d'additivité est rigoureuse à la limite, quand les facteurs de contagion peuvent être traités comme des quantités infinitésimales. Elle est donc vraie à l'approximation du premier ordre infinitésimal, qui sera par la suite la base, quelquefois implicite, du raisonnement.

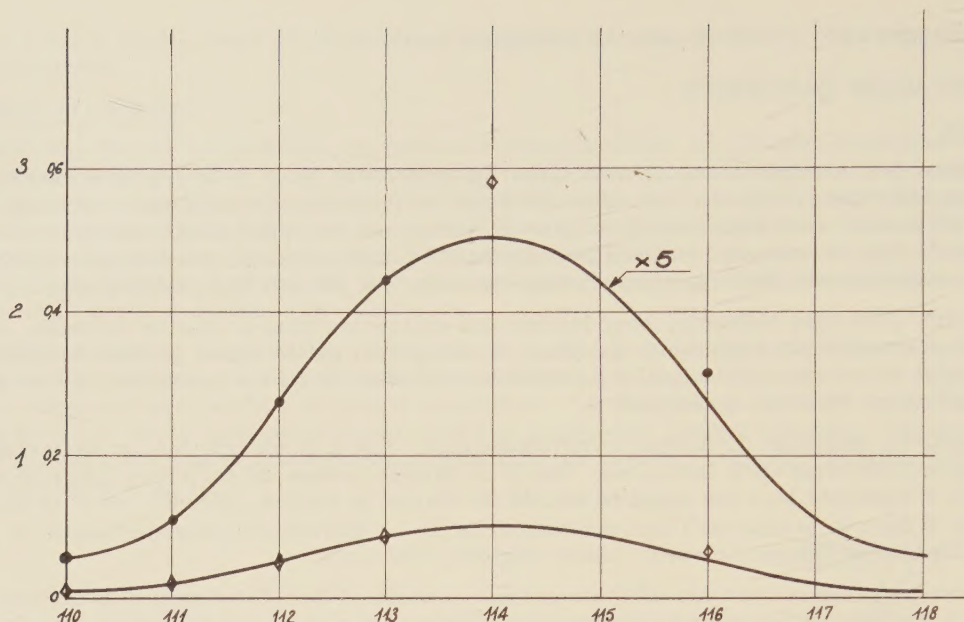


Fig. 2 - Diagramme de contage du cadmium-114.

réglissant la contage conduit à un diagramme gaussien. Dans le cas particulier, le fait peut être dû au hasard. Cependant, si nous l'admettons à titre d'hypothèse de travail, nous pouvons voir dans le sens de l'écart à cette loi du point 116, une influence supplémentaire des claquages dans la section d'accélération, claquages particulièrement fréquents et violents dans le cas de la séparation du cadmium (*). Quant au point extrapolé sur l'ordonnée 114, on peut appeler son ordonnée (si l'on normalise à 1 l'ordonnée du point expérimental) facteur d'autocontage de l'isotope 114. Nous verrons qu'il est possible d'attribuer une signification physique très précise à l'autocontage.

C) Contage éloignée et contage rapprochée.

Le diagramme de contage du cadmium appartient au domaine des masses moyennes. L'écart relatif entre les masses adjacentes est d'environ 1 %.

Dans ce domaine de masses, le réglage du séparateur est commode et relativement sûr : il est également facile de contrôler les défaillances du reste de l'appareillage.

Les lois de la contage éloignée seront étudiées en premier lieu. Cette façon d'opérer permettra, dans la première phase, de faire abstraction des incidences instrumentales ou opératoires (parmi les premières, on peut citer la stabilité insuffisante de la tension d'accélération des ions et du champ magnétique principal, également la correction imparfaite des défauts géométriques ; parmi les secondes, le réglage initial du séparateur et la conservation de ce réglage pendant toute la durée d'une séparation ou d'une expérience).

Par la suite, il faudra contrôler, dans la mesure du possible, la validité des résultats obtenus pour les écarts relatifs de masse les plus faibles. Ce faisant, on sera amené à prendre en considération les facteurs banals précédents, peut être aussi à caractériser des phénomènes physiques nouveaux, producteurs spécifiques de contage rapprochée.

IV - INSTRUMENTATION ET REGLAGE.

Il est donc important de mentionner, parallèlement à la première partie du travail de recherche sur la contage, un effort collectif du Groupe de Séparation d'Isotopes de Saclay, visant à réduire au minimum les incidences instrumentales et opératoires. C'est ainsi que je citerai la réfection complète de la

(*) On peut comprendre la contage par les masses plus lourdes lors des claquages, de la façon suivante : en se reportant à la figure 1b., on vérifiera d'abord que les faisceaux des ions les plus lourds sont plus bas au collecteur que les faisceaux les plus légers. Quand un claquage se produit, la tension d'accélération des ions s'effondre dans un temps très court, puis est restaurée par valeurs inférieures par la régulation en un temps qui peut dépasser une seconde. Pendant ce temps, les faisceaux ioniques reprennent leur place en venant du haut. Les faisceaux d'isotopes lourds balaient l'entrée des collecteurs des isotopes plus légers.

stabilisation du champ magnétique et celle de la haute tension d'accélération des ions et des alimentations des sources. Les performances intrinsèques acquises à l'heure actuelle par ces nouvelles installations permettent d'éliminer à coup sûr les mécanismes banals de contagion rapprochée susmentionnés. Elles allègent aussi et surtout la tâche des opérateurs dans les séparations de longue durée.

Dans le même temps, une étude des propriétés optiques du séparateur a été, malgré de grandes difficultés, menée à bien. La mesure directe de l'aberration d'ouverture a pu être faite et la faible valeur trouvée, tout en rendant inutile une correction plus précise, a permis également d'éliminer le défaut de coma comme mécanisme de contagion rapprochée. (*)

Enfin, la carte du champ magnétique à l'intérieur et à l'extérieur des faces polaires a été relevée et les trajectoires réelles déterminées avec précision dans le champ de fuites magnétiques.

Je dirai maintenant quelques mots sur le réglage de l'appareil. C'est une opération qu'il faut répéter souvent et qui, de ce fait, requiert l'intervention soutenue des opérateurs. L'habitude prise à Saclay consiste à examiner les impacts émanant des différents faisceaux isotopiques sur un écran à travers un hublot disposé latéralement et à régler la position de l'écran pour la réalisation du plus fort contraste. Pour pénible et délicate qu'elle soit, cette méthode donne d'aussi bons résultats qu'une mesure électrique. Cependant, les deux méthodes sont hasardeuses quand il s'agit d'aligner l'appareil sur un impact peu visible ou invisible, surtout dans la région des masses élevées. Dans cet ordre d'idées, je ferai un parallèle entre la réalisation du meilleur réglage d'un séparateur d'isotopes et les considérations courantes en optique classique, concernant l'association d'un instrument à l'oeil d'un observateur. Il est bien connu que, dans ce cas, on est souvent conduit à utiliser des grandissements surabondants pour limiter la fatigue de l'oeil. Dans le cas du séparateur d'isotopes, il serait souhaitable que la dispersion soit un peu plus élevée pour faciliter le réglage dans le haut de l'échelle des masses. Le rayon de 50 cm me semble un peu faible, et on gagnerait à le porter, dans un nouvel appareil, à 80 cm environ, si aucune contre-indication n'est donnée par l'étude de la contagion isotopique.

V - DU CHOIX D'UNE METHODE.

On cote habituellement la performance d'un séparateur d'isotopes par la valeur du facteur d'enrichissement de l'uranium-235 par rapport à l'uranium-238 que cette machine permet d'atteindre. Ce critère est très insuffisant.

D'une part, il ne donne aucune indication sur la valeur du facteur d'enrichissement entre masses adjacentes dans le haut de l'échelle (le diagramme de contagion pouvant a priori, dépendre du type de l'appareil et même des conditions expérimentales). D'autre part, il ne se prête pas à une expérimentation suivie, car les opérations auxquelles il conduit sont longues. Il est donc de peu d'utilité pour l'interprétation de la contagion. Remarquons que l'information complémentaire qui est l'enrichissement de l'uranium-238 par rapport à l'uranium-235 n'est jamais donnée, car le matériau initial étant toujours de l'uranium naturel, le rapport extrêmement élevé des abondances isotopiques dans le produit de l'enrichissement de ^{238}U ne peut être mesuré par spectrométrie de masse ou spectrométrie α pour des séparations de bonne qualité.

On conçoit donc la nécessité d'élargir les bases du raisonnement. L'exploitation des diagrammes de contagion ouvre une perspective raisonnable dans ce sens. Elle consistera à comparer entre eux les facteurs de contagion, par rapport à un même isotope de référence, de plusieurs autres isotopes. Une importance secondaire sera accordée à la valeur réelle des facteurs d'enrichissement du même nuclide. L'expérimentation devra porter sur des éléments possédant un large éventail d'isotopes.

La courbe joignant sur le diagramme les points figuratifs des facteurs de contagion (y compris le facteur d'autocontagion) définit la fonction de contagion. Cette fonction peut être la somme de plusieurs fonctions correspondant à des mécanismes de contagion distincts. Un facteur de contagion est proportionnel à la valeur de la fonction de contagion pour l'écart de masse considéré et à la largeur de la fente au collecteur, si d'une part, la fente est suffisamment large pour admettre la totalité du faisceau primaire, d'autre part, si la fonction de contagion n'a pas de variation trop rapide.

Dans la mesure où il s'agit de caractériser les mécanismes de contagion en tant que phénomènes et non d'estimer quantitativement leur poids, on pourra s'aider de la remarque suivante : si les méca-

(*) La valeur théorique $R\alpha^2$ de la coma est atteinte quand les frontières du secteur sont rigoureusement rectilignes. Dans le séparateur de Saclay, d'une part la frontière d'entrée du champ magnétique a, par construction, la courbure théorique (12) qui assure la correction de la coma, d'autre part, l'étendue finie des pièces polaires et la proximité d'angles vifs accentuent encore cette courbure. La coma est légèrement sur-correctée et sa valeur absolue est environ 1/10 de la valeur théorique.

nismes de contagion isotopique présentent une certaine constance, les fonctions de contagion présenteront une certaine parenté. Les rapports des différents facteurs de contagion dépendront donc moins des conditions expérimentales que les facteurs eux-mêmes. Comme il est bien connu qu'en matière de séparation électromagnétique la constance des conditions expérimentales laisse souvent à désirer, la méthode précédemment définie permettra d'exploiter les résultats d'expériences de reproductibilité moyenne. Je légitime ainsi par avance le caractère largement comparatif et même qualitatif d'une grande partie de l'expérimentation que je décrirai par la suite.

Réciproquement, les variations de forme des diagrammes donneront des éclaircissements sur les poids relatifs des mécanismes de contagion. Si deux diagrammes correspondant au même nuclide sont superposables à une affinité près ou à une translation verticale près, si l'on emploie une représentation semi-logarithmique, on pourra dire que les poids relatifs des mécanismes de contagion sont inchangés. Dans le cas contraire, le mécanisme global de contagion enregistrera une variation qualitative.

J'énoncerai enfin la proposition suivante, à laquelle j'attribue la valeur d'un postulat :

"La fonction de contagion relative à une espèce chimique donnée, traitée dans des conditions données pour la séparation électromagnétique des isotopes, est indépendante de l'isotope choisi comme référence."

Par exemple, le facteur de contagion du cadmium 110 dans le cadmium 112 est égal au facteur de contagion du cadmium 112 dans le cadmium 114 et à celui du cadmium 114 dans le cadmium 116. Il ne dépend que des conditions opératoires et de la différence de masse, en valeur absolue et en signe.

CHAPITRE II

L'ÉTAGE ELECTROSTATIQUE

I - PRINCIPE DE LA METHODE.

Le principe de la méthode de séparation à deux étages consiste à disposer en cascade deux appareils dispersifs séparés par un diaphragme, plaque plane où est pratiquée une fente réplique aussi exacte que possible de l'image d'un faisceau ionique. On forme sur cette fente l'image correspondant à l'isotope choisi. Le faisceau correspondant continue son chemin dans le deuxième étage, est refocalisé et collecté. Les autres faisceaux isotopiques sont arrêtés sur la plaque. Les impuretés d'origine isotopique qui traversent la fente et produiraient la contagion isotopique si le deuxième étage n'existait pas, n'ont pas nécessairement les paramètres électriques et cinétiques convenables et ne seront pas refocalisés sur la fente de sortie. On peut donc, sans présumer de l'origine de la contagion isotopique, espérer améliorer les coefficients d'enrichissement. Par contre, pratiquement, on ne pourra traiter qu'un isotope à la fois (fig. 3).

II - DESCRIPTION DE L'APPAREIL.

La structure du champ électrostatique qui constitue la partie active du deuxième étage est, en principe, astigmatique, ainsi que le premier étage magnétique. C'est un prisme cylindrique, à indice de champ électrique unité. Selon le langage traditionnel de la spectrométrie de masse, c'est un prisme à champ de Hughes et Rojansky (13). On sait que la refocalisation radiale a lieu après une déviation angulaire de $\pi/\sqrt{2}$, soit environ 127° , si toute la longueur des trajectoires se trouve à l'intérieur du champ. En fait, ainsi qu'il a été signalé par Cartan (14), on peut transposer aux champs électrostatiques la construction de Barber (15), moyennant quelques précautions particulières (fig. 4), et c'est ce qui a été fait dans le but de disposer de quelques paramètres de réglage (réglage du foyer du premier, puis du second étage). De ce fait, l'ouverture du prisme est seulement de 105° et

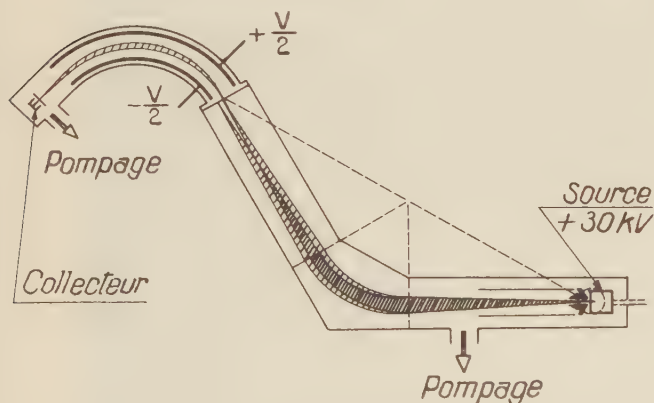


Fig. 3 - Principe de la cascade mixte.

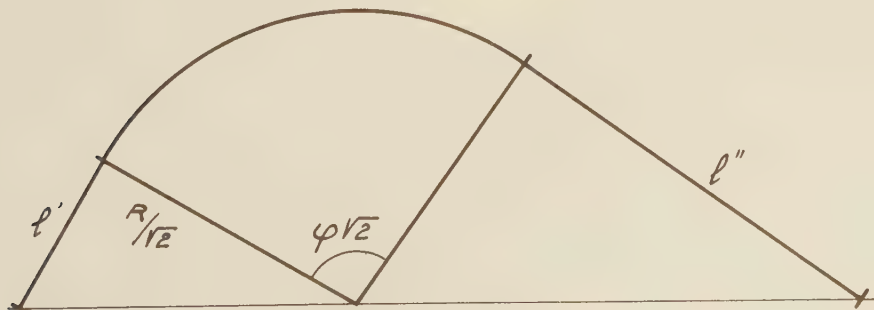


Fig. 4 - Focalisation des angles dans un champ électrostatique d'indice unité.

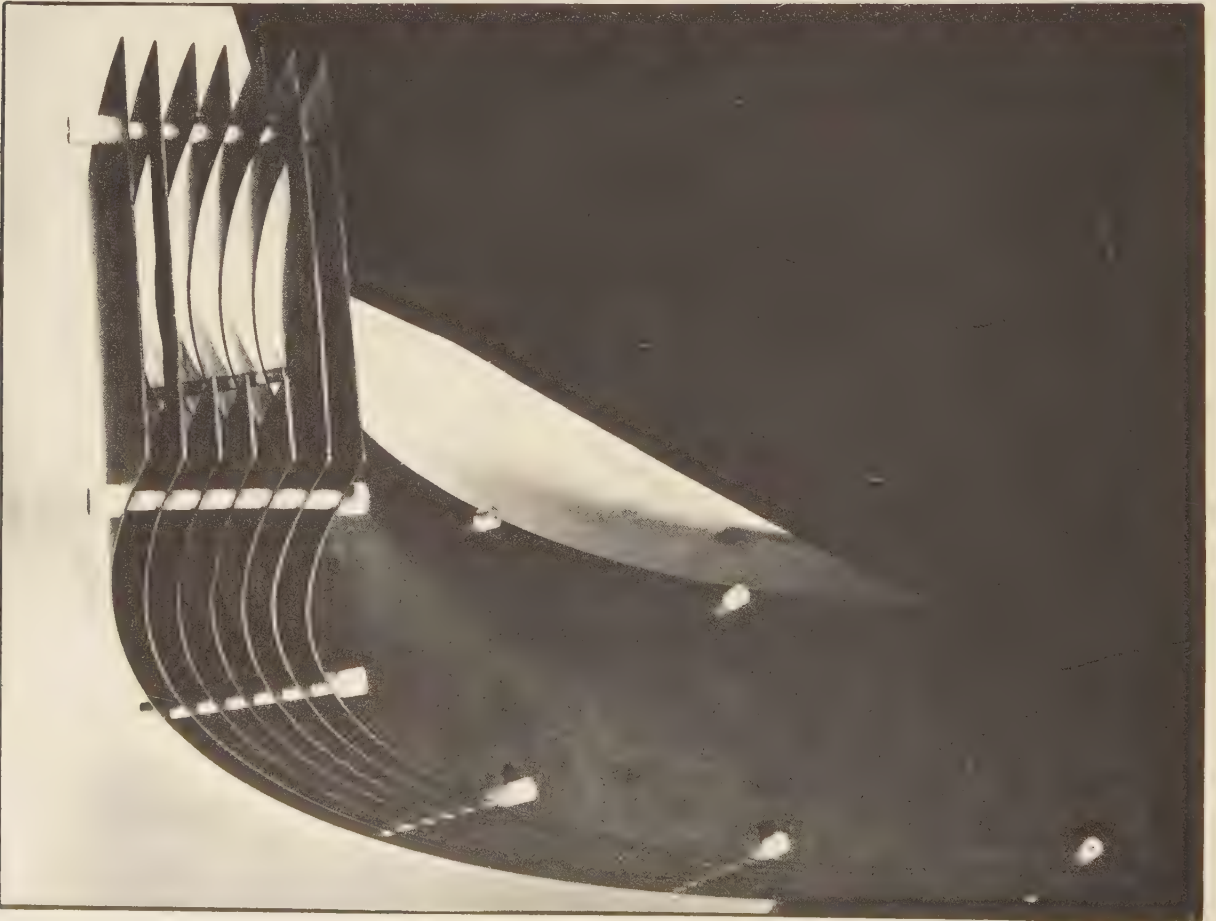


Fig. 5 - Structure des électrodes de l'étage électrostatique à champ cylindrique.

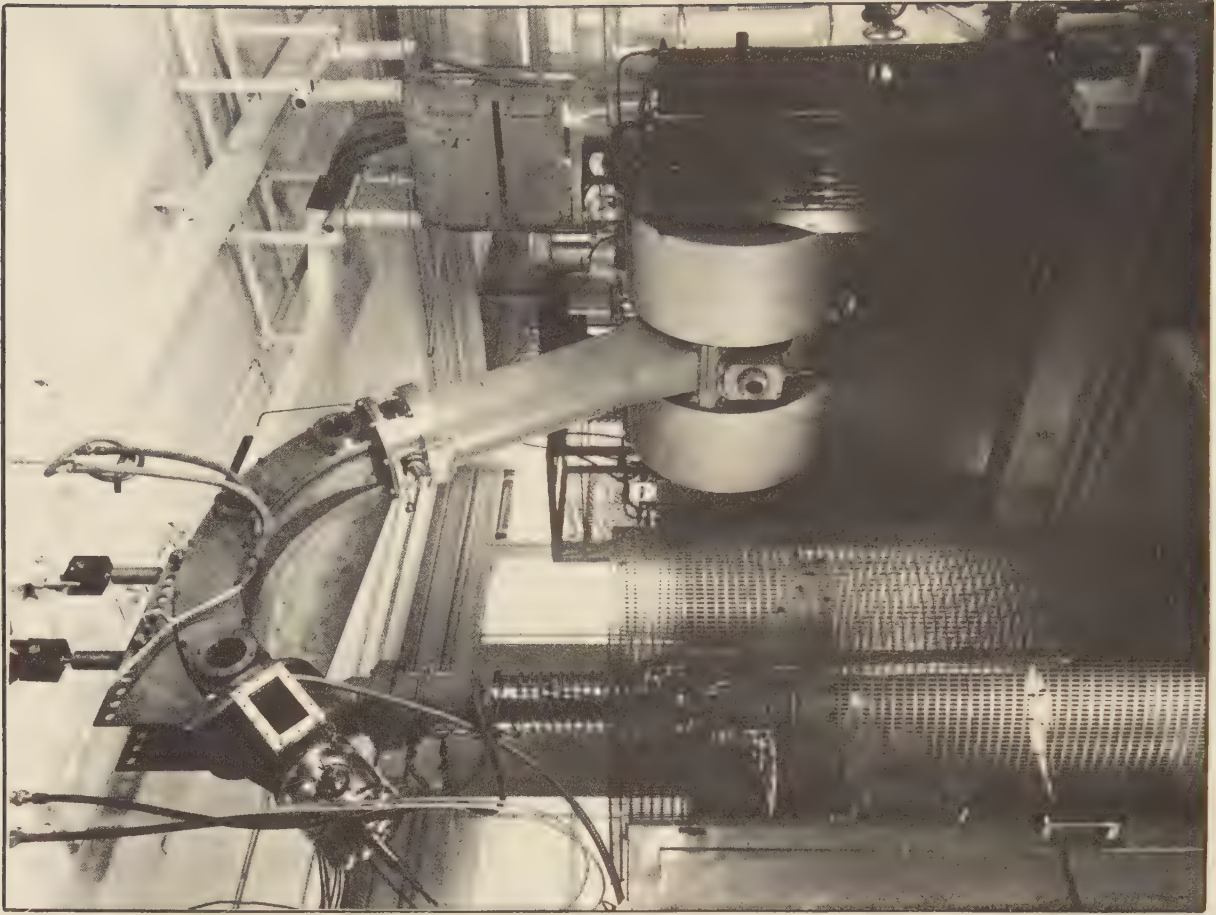


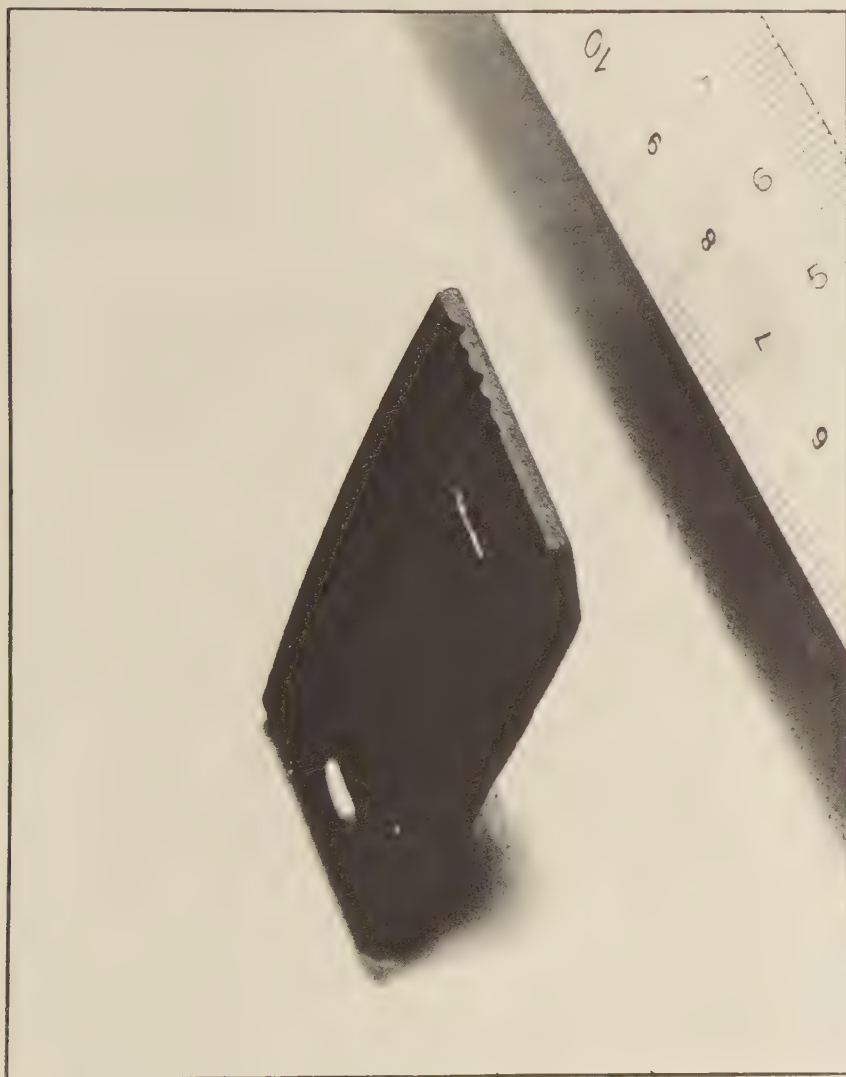
Fig. 6 - Ensemble de la cascade mixte.

les fentes d'entrée et de sortie sont légèrement écartées du système d'électrodes. Contrairement aux dispositifs électrostatiques des spectrographes de masse à haute résolution, celui-ci doit transmettre des faisceaux dont l'ouverture peut atteindre plusieurs degrés, et dont la direction moyenne d'entrée peut subir des fluctuations du même ordre de grandeur. En conséquence, les électrodes terminales sont à une distance de 7 centimètres l'une de l'autre. Le rayon moyen a été choisi arbitrairement égal à celui du premier étage, soit 50 cm. Pour ne pas donner un dimensionnement exagéré dans le sens latéral, on a dû prévoir un certain nombre d'électrodes de garde, polarisées à des potentiels convenables et qui suppriment l'influence électrostatique de l'enveloppe étanche au vide sur l'espace offert au faisceau (fig. 5).

On remarque sur la figure 6 que les courbures des trajectoires ioniques sont en sens opposé dans les deux étages. Ceci est dû, non à une exigence théorique quelconque, mais simplement à la hauteur de plafond disponible et à la nécessité d'accéder aisément aux diverses parties de l'appareil.

Je n'insiste pas sur la réalisation de l'enveloppe. La construction a laissé beaucoup à désirer et l'alignement mécanique, ainsi que l'étanchéité, ont posé quelques problèmes de technologie qui ont dû être quelquefois, résolus par des moyens peu orthodoxes.

La tension de fonctionnement est un peu inférieure à 9 000 volts entre électrodes terminales, pour une énergie des ions de 30 keV. Les électrodes de garde sont connectées à différents points d'une chafne de résistances calculée de façon à assurer une répartition de champ voisine de la répartition théorique. La masse est reliée au milieu de la chafne. Le débit de la chafne de résistances est environ vingt milliampères, ce qui s'est révélé plus que suffisant, mais constitue une bonne sécurité contre le déséquilibre ou l'effondrement éventuels du champ lors de l'impact accidentel du faisceau sur une électrode.



III - MISE AU POINT ET RESULTATS.

Cet analyseur, dont l'étude avait commencé au mois de janvier 1954, a été mis en service en novembre 1955. Il a tout d'abord servi à préparer du magnésium 24 et du molybdène 92. Aucun contrôle de l'enrichissement n'a été fait sur ces corps. Il s'agissait, en effet, plutôt d'un essai technologique de l'appareil que d'un essai de performances. L'essai technologique a été satisfaisant : bonne étanchéité, qualité des images acceptable, quelques claquages le long des isolants disparaissant rapidement.

L'essai de performance proprement dit a été fait au mois de février 1956 et a porté sur l'uranium, plus exactement sur l'enrichissement de l'isotope 235 dans l'isotope 238. L'intensité du faisceau d'uranium était voisine de 300 microampères. Une séparation de quelques dizaines d'heures a permis de recueillir une fraction de milligramme d'uranium, dans lequel l'abondance de l'isotope 235 dans l'uranium total est de $79 \pm 3 \%$.

Cette mesure d'abondance isotopique a été faite par spectrométrie α . Il est intéressant de constater qu'à de tels pourcentages isotopiques la correction due à la structure fine α de ^{235}U devient importante.

Fig. 7 - Erosion du diaphragme situé entre les deux étages lors de la séparation isotopique du mercure-204. Ce diaphragme arrête les faisceaux des isotopes autres que le 204, qui creusent, par pulvérisation cathodique, une figure d'érosion dont le profil rappelle le spectre de masses du mercure naturel.

L'enrichissement de ^{235}U dans cette opération dépasse 500. (La charge de source était de l'uranium naturel dans lequel l'abondance de l'isotope 235 est de 7 p. 1 000).

A titre de comparaison, immédiatement après cette séparation, il a été procédé à une autre dans les mêmes conditions, mais sans post-analyse électrostatique. Dans cette opération, l'abondance du ^{235}U collecté est de 11,5 % dans l'uranium total. L'enrichissement est environ 19. D'autres séparations ont été faites par la même méthode à deux étages. Le contrôle de la contagion n'a pu être fait que dans quelques cas particuliers. L'uranium 238 a été enrichi 850 fois par rapport à l'uranium-234.

La séparation de plusieurs isotopes du mercure mérite une mention particulière. Une circonstance favorable résulte du fait que tous les isotopes stables, à l'exception d'un seul, ont des abondances du même ordre de grandeur et que le réglage du premier étage est relativement facile (fig. 7). Par contre, la valeur élevée de la tension de vapeur du mercure qui constitue la charge de source est un inconvénient sérieux.

Si le piégeage de la vapeur sortant de la source n'est pas fait avec un soin extrême, le produit de la collection est contaminé par du mercure naturel. La vapeur du mercure a été piégée à la température de l'azote liquide en quatre endroits, dont un dans le deuxième étage. La répartition des points froids n'était pas la meilleure possible. En fait, on a piégé la vapeur de mercure partout où il était possible de le faire, compte tenu des particularités de construction de l'enceinte étanche.

L'opération de séparation a été très délicate. Ce n'est qu'au bout de plusieurs tentatives que la meilleure performance a été atteinte. Elle a consisté à préparer quelques milligrammes de mercure-204, dont la pureté isotopique, mesurée par spectrométrie de masse, atteignait 99,4 %.

La meilleure performance obtenue sur ce même nuclide sans étage électrostatique, deux ans auparavant, avait été de 70 % environ (16).

IV - COMMENTAIRES SUR L'INSTRUMENTATION.

Quand l'intensité est faible, les images sont bonnes, bien que la mécanique du système d'électro-

des soit peu précise. Le coefficient de transmission de l'étage électrostatique est voisin de l'unité. Quand l'intensité atteint quelques dizaines de microampères, les phénomènes de charge d'espace commencent à se manifester. Leur influence est la plus grande perpendiculairement au champ électrique, étant donné l'absence de toute focalisation dans cette direction. Les images restent acceptables, mais le coefficient de transmission est diminué par suite de l'éclatement latéral du faisceau.

L'influence de l'intensité moyenne sur le coefficient de transmission du deuxième étage introduit de la distorsion dans les spectres de masse que l'on peut relever par balayage du champ magnétique, toutes tensions électriques restant constantes. Cet effet est particulièrement net si l'on s'arrange pour mesurer, non l'intensité totale arrivant au collecteur, mais la densité de courant au centre de l'image (il suffit pour ce faire, d'orienter la fente du collecteur à angle droit de la direction ordinaire). Les figures 8 représentent l'enregistrement dans ces conditions du spectre de masses d'un argon impur, à deux intensités moyennes différentes. Quand l'intensité moyenne est faible, les pics ont des aspects normaux. Sous une intensité plus élevée, le pic abondant de l'argon est fourchu, ce qui traduit l'éclatement du faisceau correspondant. Les autres pics conservent une allure normale.

Quand l'intensité augmente encore (au-



Fig. 8 - Distorsion due à la charge d'espace dans l'étage électrostatique.

a) intensité faible,

b) intensité élevée.

dessus de 250 microampères environ), il se produit un phénomène nouveau. L'ionisation du gaz résiduel par le faisceau provoque des courants d'électrodes importants et modifie les potentiels appliqués. La focalisation est profondément altérée. La largeur des images devient grande, mais l'éclatement latéral est compensé et le coefficient de transmission augmente de nouveau. Il a été possible de collecter un faisceau de ^{24}Mg de 2 mA sur une ouverture rectangulaire de 25 x 60 mm.

Ainsi qu'on le verra par la suite, la résolution de l'étage électrostatique n'est pas déterminante pour le facteur global d'enrichissement de la cascade. On a pu, ainsi, profiter des enseignements de l'expérience précédente pour pallier artificiellement la perte d'intensité résultant de la charge d'espace. Dans ce but, on a renoncé à une optique astigmatique dans l'étage électrostatique et adopté une optique convergente à la fois radialement et latéralement. L'indice de champ électrostatique adopté, soit $n = 1,4$, permet, en théorie, moyennant un faible allongement de la longueur des trajectoires, d'obtenir une image ponctuelle, l'objet étant la fente de sortie du premier étage. Le gain sur le rendement peut, dans certains cas, dépasser 10 (fig. 9).

V - L'ETAGE ELECTROSTATIQUE CONSIDERE COMME OUTIL D'INVESTIGATION.

Je rappelle brièvement que la fonction organique d'un champ électrostatique est celle d'un filtre

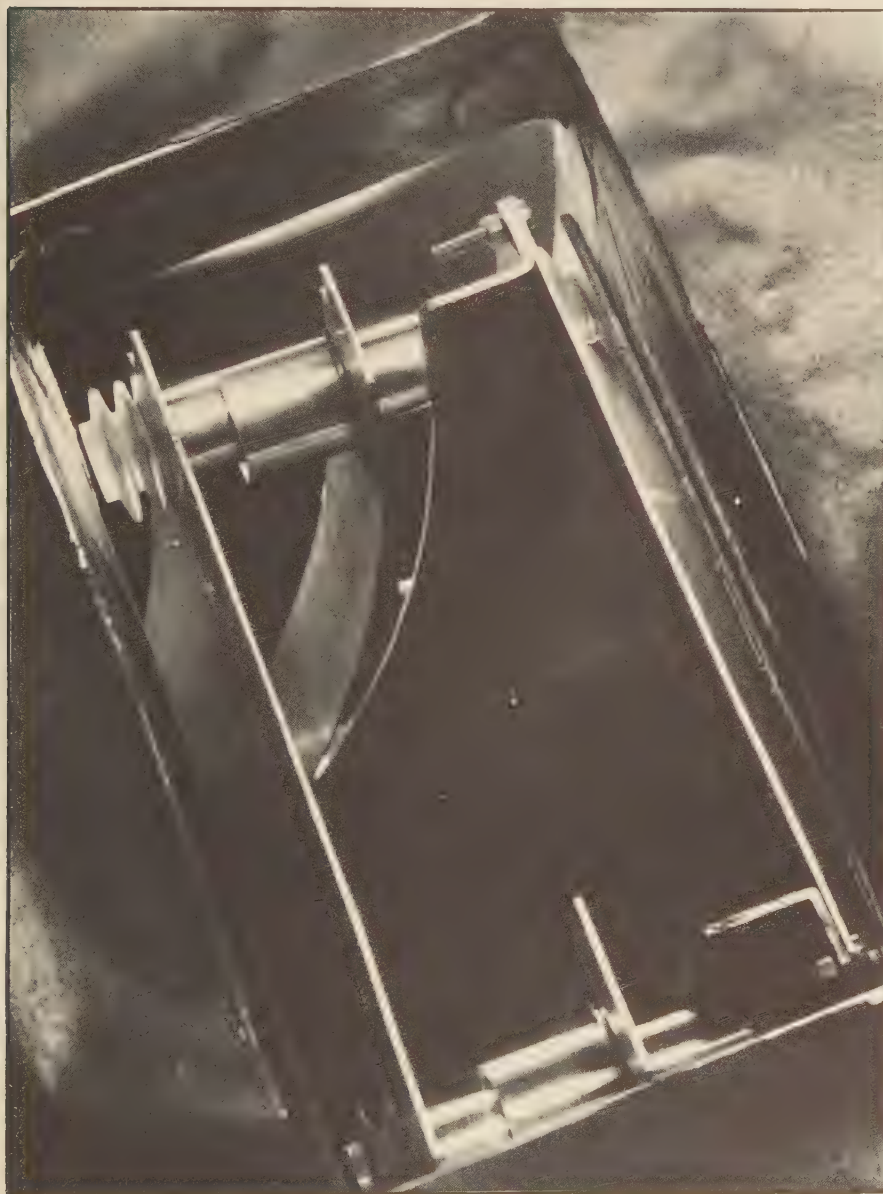


Fig. 9 - Structure des électrodes de l'étage électrostatique à champ demi-stigmatique.

d'énergie. Les trajectoires d'un faisceau d'ions lancé dans l'étage électrostatique et focalisé sur la fente du collecteur ne dépendent ni de l'intensité, ni de la masse des ions du faisceau (à la charge d'espace près), mais seulement de l'énergie cinétique qui, si on l'exprime en électron volts, est numériquement égale à la tension d'accélération des ions de charge unitaire. Quand la charge des ions délivrés par la source et accélérés n'est pas unitaire, la notion de masse apparente est applicable : le rapport entre la tension d'accélération des ions et la tension appliquée à l'étage électrostatique est inchangé.

Si, la cascade électrostatique étant alignée sur un faisceau homogène, on procède au balayage du champ magnétique, la fente intermédiaire est balayée successivement par les faisceaux séparés par le premier étage, mais, au collecteur final, les impacts sont toujours sur la fente. (fig. 10a).

Par contre, si on balaye la tension d'accélération des ions et non plus le champ magnétique, on provoque un déséquilibre électrique entre les deux étages, et les impacts des différents faisceaux ne sont plus confondus sur la fente du collecteur (fig. 10b)

Cette remarque nous sera utile pour déterminer,

par une simple substitution isotopique, l'échelle de dispersion spatiale en fonction de l'énergie de l'étage électrostatique, sans procéder à la moindre mesure électrique.

Fig. 10a. 10b.

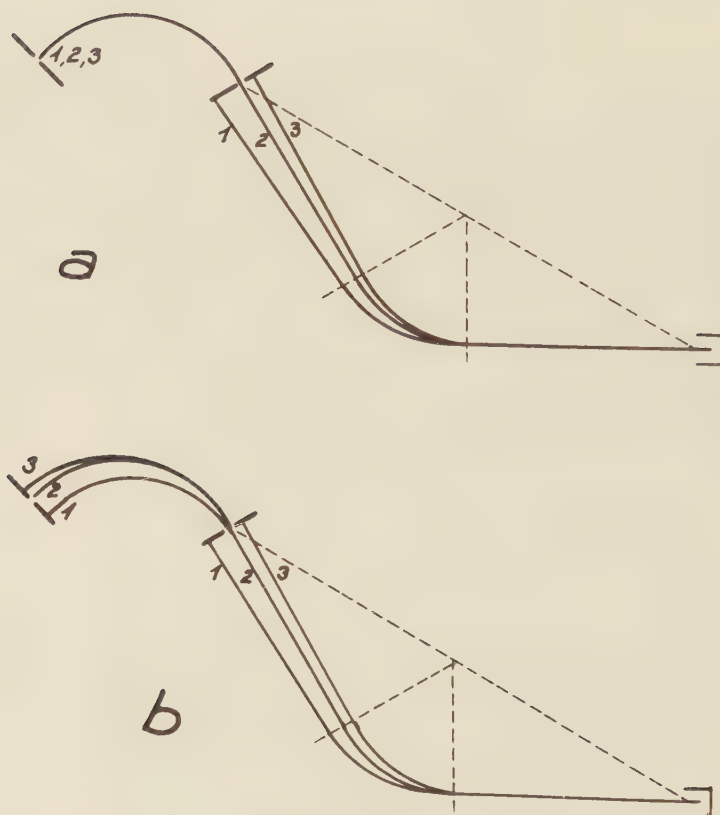


Fig. 10 - Dispersion de l'étage électrostatique.
a) balayage du champ magnétique ;
b) balayage de la tension d'accélération des ions.

CHAPITRE III

LE SCHÉMA DE CONTAGION ISOTOPIQUE ÉLOIGNÉE

PREMIÈRE PARTIE

DESCRIPTION DE QUELQUES MECANISMES BANALS, EXPERIENCES PRELIMINAIRES, HYPOTHESES, REFUTATION DU CHROMATISME.

I - LES MECANISMES BANALS.

J'ai mentionné au chapitre I certains mécanismes d'origine instrumentale ou opératoire, susceptibles d'altérer la pureté isotopique des produits des séparations. L'exploitation du séparateur de Saclay a révélé plusieurs autres mécanismes de contagion, que j'appelle mécanismes banals, qu'il est facile de reconnaître et d'annihiler quand leur présence a été constatée.

A) La contagion par l'élément naturel.

Ce type de contagion a été rencontré dans les premières séparations de mercure, et provenait de la condensation de la vapeur de mercure venant de la source sur le collecteur, refroidi à la température de l'azote liquide. Nous avons vu, au chapitre précédent, comment ce mécanisme de contagion a été supprimé.

A la suite d'une erreur grossière de jugement, le même type de contagion a été rencontré dans plusieurs séparations expérimentales récentes de cadmium, sur lesquelles j'aurai l'occasion de revenir. Le cadmium naturel était une impureté de cuivre du collecteur et s'est trouvé mélangé aux produits de la séparation lors de la récupération par attaque chimique.

La fonction de contagion par l'élément naturel est une constante. Le facteur d'autocontagion correspond à la quantité de l'isotope séparé qui pénètre dans le collecteur par un processus de contagion, ou qui y préexiste.

On pourra reconnaître la contagion par l'élément naturel dans l'examen d'un diagramme de contagion, si la fonction globale ne tend pas vers zéro à grande distance.

B) Le rebondissement.

Dans la quasi-totalité des cas, la région du collecteur soumise à l'impact des ions rapides subit la pulvérisation cathodique et aucun dépôt ne s'y forme. On recueille les isotopes sur les parties du collecteur masquées par rapport à l'impact direct. On conçoit que des atomes d'un isotope donné puissent sortir du collecteur et venir au repos dans le collecteur d'un autre isotope à la faveur d'un rebondissement supplémentaire.

Ce mécanisme de contagion a été observé lors de la collection simultanée de deux isotopes du mercure. Le schéma du collecteur est représenté sur la figure 11. Conçu pour pallier la contagion par la vapeur de mercure naturel, ce collecteur est défectueux par rapport au rebondissement. L'expérience a

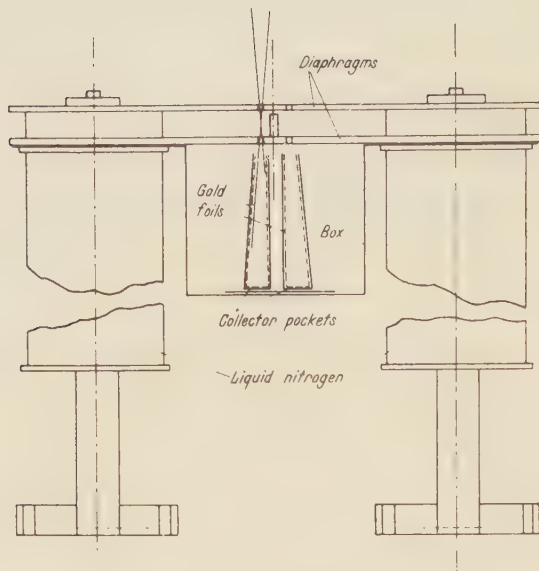


Fig. 11 - Collecteur pour le mercure.

sultats de l'exploitation de la cascade électrostatique, qu'il s'agisse de performances brutes de la machine ou d'expérimentation, pour étudier les mécanismes plus dissimulés de contagion isotopique.

Les mécanismes banals que j'ai passés en revue interviennent aussi, a priori, dans les séparations à deux étages. La contagion par l'élément naturel est palliée comme plus haut. En ce qui concerne le rebondissement, j'ai vérifié, dans un cas particulier, qu'il pouvait être négligé en tant que mécanisme de contagion dans les séparations à deux étages. L'expérience a consisté à introduire dans l'étage électrostatique un faisceau d'ions d'uranium-238 d'énergie 30 keV, après avoir réuni entre elles et au sol toutes les électrodes. Le faisceau suivait un parcours rectiligne et était arrêté par l'électrode supérieure. Le seul moyen d'accès de l'uranium au collecteur était le rebondissement. Après plusieurs heures, l'opération fut arrêtée et la radioactivité α du collecteur mesurée. Malgré les circonstances rendues volontairement très favorables à l'observation du rebondissement, aucune trace d'uranium ne fut décelée.

Je remarquerai, enfin, que le deuxième étage électrostatique remédie organiquement à la contagion issue des claquages (mode primaire), si sa finesse est suffisante et si la source de tension qui l'alimente est indépendante de la source de tension d'accélération des ions. Ce ne serait pas le cas d'un deuxième étage magnétique.

Parmi les mécanismes différents de ceux déjà énumérés, susceptibles de produire la contagion isotopique, deux méritent d'être examinés soigneusement : la diffusion et le chromatisme.

A) Diffusion.

Les ions peuvent, au cours de leur trajet dans le séparateur, être diffusés par les atomes ou les molécules de l'atmosphère résiduelle et pénétrer dans un collecteur autre que le collecteur nominal. Il est, en effet, reconnu de longue date que, d'une façon générale, les séparations sont de meilleure qualité quand la pression de fonctionnement d'un séparateur est plus basse.

Cependant, cet argument n'est pas décisif. Il a été constaté, en effet, en plusieurs endroits, que, lorsque la pression de fonctionnement d'un séparateur devenait trop faible, il était impossible de conserver la résolution de l'appareil et même l'intensité au collecteur. On assistait à un véritable éclatement des faisceaux que l'on palliait en relevant la valeur de la pression moyenne. Je reviendrai sur ce point.

Par ailleurs, si l'on considère les seuls phénomènes de diffusion sans variation de l'état de charge, on peut difficilement expliquer l'efficacité de l'étage électrostatique.

B) Chromatisme.

Une autre hypothèse couramment admise, consiste à rendre responsable de la contagion isotopique, la dispersion des énergies initiales des ions sortant des sources.

montré que les deux isotopes collectés se contaminaient réciproquement à un taux élevé.

C) La contagion provenant d'une résolution insuffisante.

Diverses causes peuvent altérer la résolution d'un séparateur. Ce peuvent être, par exemple, un mauvais réglage, ou une instabilité résiduelle du champ magnétique. Les faisceaux ioniques sont alors incomplètement séparés au collecteur. La fonction de contagion reproduit, à une symétrie près, le profil de la densité ionique moyenne au collecteur d'un faisceau particulier.

D) La contagion due aux claquages.

Nous avons vu au chapitre I le mécanisme primaire de contagion par les claquages. Un effet secondaire est constitué par l'élévation de pression, due aux dégazages consécutifs aux claquages, qui peut constituer une cause distincte de contagion.

II - LES AUTRES MECANISMES DE CONTAGION.

Dans un grand nombre de cas, le simple examen des résultats des analyses isotopiques, confrontés avec les conditions expérimentales, permet de faire leur part aux mécanismes banals. Après leur élimination, il est indiqué de mettre à profit les ré-

Il s'ensuivrait un élargissement des pics au collecteur et un chevauchement partiel des faisceaux isotopiques qui passeraient inaperçus lors du réglage. Le réglage de l'étage magnétique est une opération très subjective si le contrôle est visuel et, dans le cas d'un contrôle électrique, les minima de courant entre pics adjacents sont rarement nuls. Bien que l'ordre de grandeur de la bande d'énergie nécessaire pour créer la contagion soit peu susceptible d'être atteint (± 300 volts pour $\frac{\Delta m}{m} = \pm \frac{1}{100}$, et une énergie initiale de 30 keV), cette hypothèse doit être examinée sans parti pris, car l'interaction des faisceaux avec le gaz résiduel dans la section d'accélération peut provoquer un phénomène analogue (trainage d'énergie).

III - QUELQUES EXPERIENCES FAITES AU MOYEN DE LA CASCADE MIXTE.

Des arguments en vue de la discussion des hypothèses précédentes ont été retirés d'une série d'expériences faites avec la cascade mixte mettant à profit la fonction d'analyseur d'énergie du deuxième étage. Les corps d'épreuve ont été le molybdène, qui comporte sept isotopes stables d'abondance comparable, et l'argon, délivrés simultanément par la même source d'ions (source à pulvérisation cathodique).

A) La largeur de la fente de sortie de l'étage électrostatique étant de 2 mm, à peu près égale à celle estimée par observation visuelle du faisceau à cet endroit, on détermine la dispersion en énergie de l'étage. Pour ce faire, on aligne l'appareil entier sur un isotope de molybdène, soit ^{95}Mo , et on balaie la haute tension d'accélération des ions. On constate que les images des différents isotopes du molybdène s'impriment sur la plaque frontale du collecteur, à une distance de la fente égale au produit de l'écart de masse par 12 (en millimètres). Ceci donne un étalonnage en énergie de l'étage électrostatique (voir figure 10b).

B) Si l'on balaie la tension du deuxième étage de part et d'autre de sa valeur nominale, on constate que l'intensité au collecteur tombe rapidement à zéro. La position de l'impact au collecteur est alors proche de la fente (moins de 5 mm), ce qui montre que la résolution en énergie du deuxième étage est nettement meilleure que 1 %. La largeur du pic semble indépendante de la pression dans l'un et l'autre étage. Si l'amplitude du balayage est de quelques pour cent en plus ou en moins de la tension nominale, on n'observe dans le spectre relevé que ce pic isolé, sans aucun indice de structure (spectre de masses). Le résultat de cette expérience est identique si l'appareil est aligné sur un faisceau faible (^{235}U) voisin d'un faisceau intense (^{238}U) dans le premier étage.

C) L'appareil entier étant aligné, on balaie le champ magnétique, toutes tensions électriques restant constantes. Au collecteur les pics naissent et disparaissent sur place. On enregistre ainsi le spectre de masses du molybdène (voir figure 10a). On constate que les qualités du spectre (résolution et profondeur des vallées) sont affectées défavorablement par une augmentation de la pression dans l'étage magnétique. Une augmentation de pression dans l'étage électrostatique semble sans effet, à l'atténuation près.

D) L'expérience que je décris maintenant a trait aux changements d'état de charge des faisceaux ioniques en vol. J'aurai l'occasion de revenir sur ce point.

L'appareil entier étant aligné sur un faisceau intense d'argon, si l'on balaie la tension de l'étage électrostatique entre la valeur nominale V et zéro, on constate l'apparition de pics plus petits mais bien définis pour les valeurs $V/2$, $V/3$, quelquefois $V/4$, de la tension. L'intensité du pic principal diminue quand on fait croître la pression dans le premier étage ; dans le même temps, l'intensité des petits pics augmente.

IV - REFUTATION DU CHROMATISME ET DU TRAINAGE D'ENERGIE EN TANT QUE MECANISMES DE CONTAGION ISOTOPIQUE.

Les expériences précédentes (A, B, C) réfutent le chromatisme et le trainage d'énergie en tant que mécanismes de contagion isotopique. En effet, si un niveau décelable de contagion était dû à ces mécanismes, on observerait obligatoirement une structure analogue à un spectre de masses en mesurant le courant au collecteur et en balayant la tension de l'étage électrostatique. On a vu que ce n'est jamais le cas.

DEUXIÈME PARTIE

LA DIFFUSION, CAUSE PREPONDERANTE DE LA CONTAGION ISOTOPIQUE ELOIGNEE

I - GENERALITES SUR LA DIFFUSION.

Des nécessités instrumentales ont conduit à fixer, pour la totalité des séparateurs électromagnétiques existants, la valeur de la tension d'accélération des faisceaux ioniques à quelques dizaines de kilovolts, 30 à 50 kV le plus souvent. Le facteur le plus important, dans cet ordre d'idées, est la possibilité de former des faisceaux ioniques bien définis et d'une intensité acceptable. A cet argument s'ajoute celui de la neutralisation de la charge d'espace qui requiert des énergies ioniques du même ordre de grandeur, correspondant à des valeurs non dérisoires des sections efficaces d'ionisation par les ions positifs.

Or, ce domaine d'énergie est celui où les lois des collisions des particules lourdes, atomes, molécules ou particules chargées provenant d'atomes ou de molécules, (18), sont le plus mal connues et le plus mal étudiées.

Les résultats expérimentaux bruts présentent, jusqu'à ces dernières années, une grande confusion. On peut noter, à côté de résultats contradictoires, de nombreuses publications sans lendemain (19, 20), caractéristiques de l'ingratitude du sujet. Un tel état de choses ne pouvait guère favoriser l'éclosion de théories valables, même sans tenir compte de la difficulté des calculs.

La situation semble actuellement se modifier dans le sens favorable, tout au moins en ce qui concerne la partie expérimentale. Depuis la publication par Keene (21) de valeurs de sections efficaces d'ionisation et d'échange de charges, les résultats expérimentaux manifestent une bonne concordance. Toutefois, on doit remarquer que, si les valeurs données par Keene sont recoupées par la plupart des chercheurs, sa propre publication a été sans lendemain.

L'école dont les résultats m'ont été les plus utiles est l'école de l'Institut de Physique Technique de Leningrad, dont le chef de file dans la branche en question est N. V. Fedorenko. Cet auteur publie avec continuité sur le sujet depuis 1954. Dans son premier article (22) dont la traduction anglaise est venue entre mes mains en juin 1956, peu de temps après l'obtention des premiers résultats de la cascade électrostatique sur l'uranium, il a signalé, pour la première fois, l'observation de phénomènes de perte d'électrons ou stripping des ions incidents dans des énergies relativement basses, ainsi que la diffusion à petit angle concomitante. Ce premier article m'a permis de développer un schéma de contagion isotopique. En effet, la diffusion des neutres rapides dans la deuxième partie rectiligne des trajectoires fournit une explication plausible de l'allure de la courbe de contagion donnée au chapitre II après disjonction des claquages, ainsi que du gain en enrichissement donné par l'étage électrostatique. Au point de vue quantitatif, on peut comparer les sections efficaces de neutralisation et de stripping données par Fedorenko et, compte tenu que le stripping a été mis en évidence sur l'appareil de Saclay (expérience D de la première partie de ce chapitre, faite à titre de vérification des résultats de Fedorenko), déduire grossièrement du courant d'ions "strippés" l'importance du courant de neutres. En postulant une répartition angulaire de diffusion comparable à celle donnée par Fedorenko pour le stripping (fig. 12), on peut bâtir un schéma de contagion isotopique.

II - PREMIER SCHEMA DE CONTAGION ISOTOPIQUE.

La contagion isotopique est due à la diffusion des faisceaux accélérés sur le gaz résiduel de la chambre de séparation. D'une façon générale, les angles de diffusion sont petits et les variations d'énergie et de vitesse de la particule rapide sont négligeables. Dans le domaine d'énergie qui est celui des séparateurs d'isotopes, le type le plus fréquent de collision (pour un ion à charge unitaire) est la capture électronique ou neutralisation, mais on observe aussi la perte d'un ou plusieurs électrons (stripping). On observe également des collisions binaires sans variation de charge de la particule rapide, accompagnées ou non d'ionisation de la particule lente.

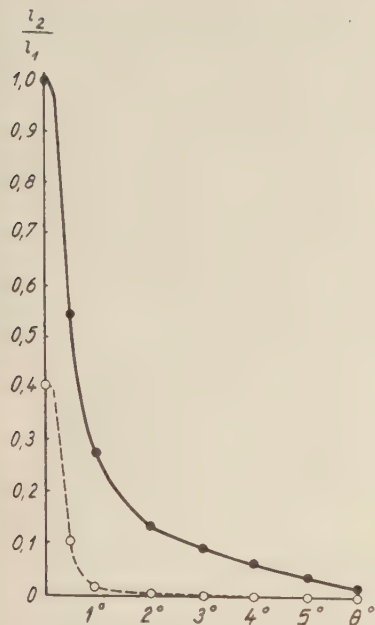


Fig. 12 - Répartition angulaire de stripping dans l'azote d'ions d'argon d'énergie 12 keV (d'après Fedorenko).

Dans un appareil à secteur magnétique unique, tous ces mécanismes concourent à la contagion isotopique ; les collisions avec variation de charge sont efficaces seulement dans la deuxième partie rectiligne des trajectoires, après traversée du champ magnétique ; les collisions sans échange de charge sont efficaces sur toute la longueur du parcours. Le type de collision le plus efficace vis-à-vis de la contagion isotopique est la capture électronique, dont la section efficace est de beaucoup la plus élevée.

La fonction d'un post-analyseur électrostatique est, en principe, celle d'un filtre d'énergie. Compte tenu qu'aucune contagion ne provient d'une dispersion d'énergie, cette fonction est simplement celle d'un filtre d'état de charge. Par rapport à la contagion provenant de la diffusion avec changement d'état de charge, l'efficacité de l'étage électrostatique est totale. Par contre, vis-à-vis de la diffusion sans changement de charge, l'étage électrostatique est inefficace car la variation d'énergie de la particule rapide lors du choc est négligeable par rapport à l'énergie cinétique initiale.

On voit maintenant la signification physique de l'autocontagion dans le cas de la diffusion. Elle est due aux particules diffusées à très petit angle, ou hors du plan des trajectoires des ions, et qui viennent au repos dans leur collecteur nominal.

III - INSUFFISANCE DU SCHEMA PRECEDENT.

Les publications suivantes de Fedorenko, non traduites du russe, m'ayant échappé, c'est seulement au mois de juin 1957 que j'ai pris connaissance de ses résultats plus récents. A cette date, il résuma ses travaux en une communication au Congrès de Venise sur les Phénomènes d'Ionisation dans les Gaz (23). Il m'apparut alors que le schéma de contagion isotopique que j'avais formulé nécessitait au moins quelques retouches. En effet, la distribution angulaire qui m'avait servi de point de départ, correspondait au "stripping" de l'argon dans l'azote, sous une énergie de 10 keV. Elle s'étendait sur plusieurs degrés, alors que la distribution angulaire de neutralisation donnée dans la figure 13 était incontestablement plus pointue.

Avec une distribution angulaire de neutralisation large, on peut comprendre la contagion par les isotopes plus lourds et même une certaine symétrie de la fonction de contagion. Avec une distribution très pointue, la zone efficace est alors la sortie du champ magnétique et on ne peut contaminer que par les isotopes plus légers, les neutres formés s'échappant par la tangente. Dans les mêmes conditions, le stripping est l'origine de contagion par les isotopes plus lourds. Compte tenu des valeurs très supérieures des sections efficaces de neutralisation, j'admettrai que ce seul phénomène impose son allure générale à la fonction de contagion globale.

Les contagions déjà rencontrées, du cadmium-114 par le cadmium-116, ainsi que de l'uranium-235 par l'uranium-238, sont extrêmement inquiétantes pour la validité du schéma.

Cependant, l'évidence de l'efficacité de l'étage électrostatique dans la séparation d'uranium-235 et les résultats de l'expérimentation faite depuis confirmaient le schéma de contagion dans ses grandes lignes. J'ai donc entrepris une investigation séparée sur les distributions angulaires des ions neutralisés, le schéma général pouvant être sauvé par l'existence de distributions angulaires suffisamment larges, dans les domaines encore inexplorés à ce point de vue des masses lourdes et moyennes.

L'objectif limité que je visais m'a permis d'utiliser un appareillage et un mode opératoire relativement simples. Je n'ai étudié que les diffusions résultant de neutralisation et, dans la mesure où l'interprétation des résultats revêt la forme comparative que j'ai définie au chapitre I, je ne me suis intéressé qu'aux distributions angulaires et non aux valeurs absolues des sections efficaces (dont la mesure aurait été beaucoup plus délicate et ardue).

Par contre, j'ai employé dans cette étude des ions de nature inhabituelle dans cette classe de recherches. A côté de l'argon 40 représentant les masses légères, j'ai pris, comme corps d'épreuve, le palladium-108 et l'uranium-238, représentant respectivement les masses moyennes et lourdes.

IV - MESURE DE LA REPARTITION ANGULAIRE DE LA DIFFUSION AVEC ECHANGE DE CHARGE PAR DES ATOMES D'ARGON, D'IONS POSITIFS D'ARGON 40, DE PALLADIUM 108 ET D'URANIUM 238 D'ENERGIE EGALE A 30 keV, ET DE CHARGE UNITAIRE (24).

A) Principe de la méthode et description de l'appareillage.

$\frac{d\sigma}{d\omega_0} \text{ (cm}^2/\text{strd)}$

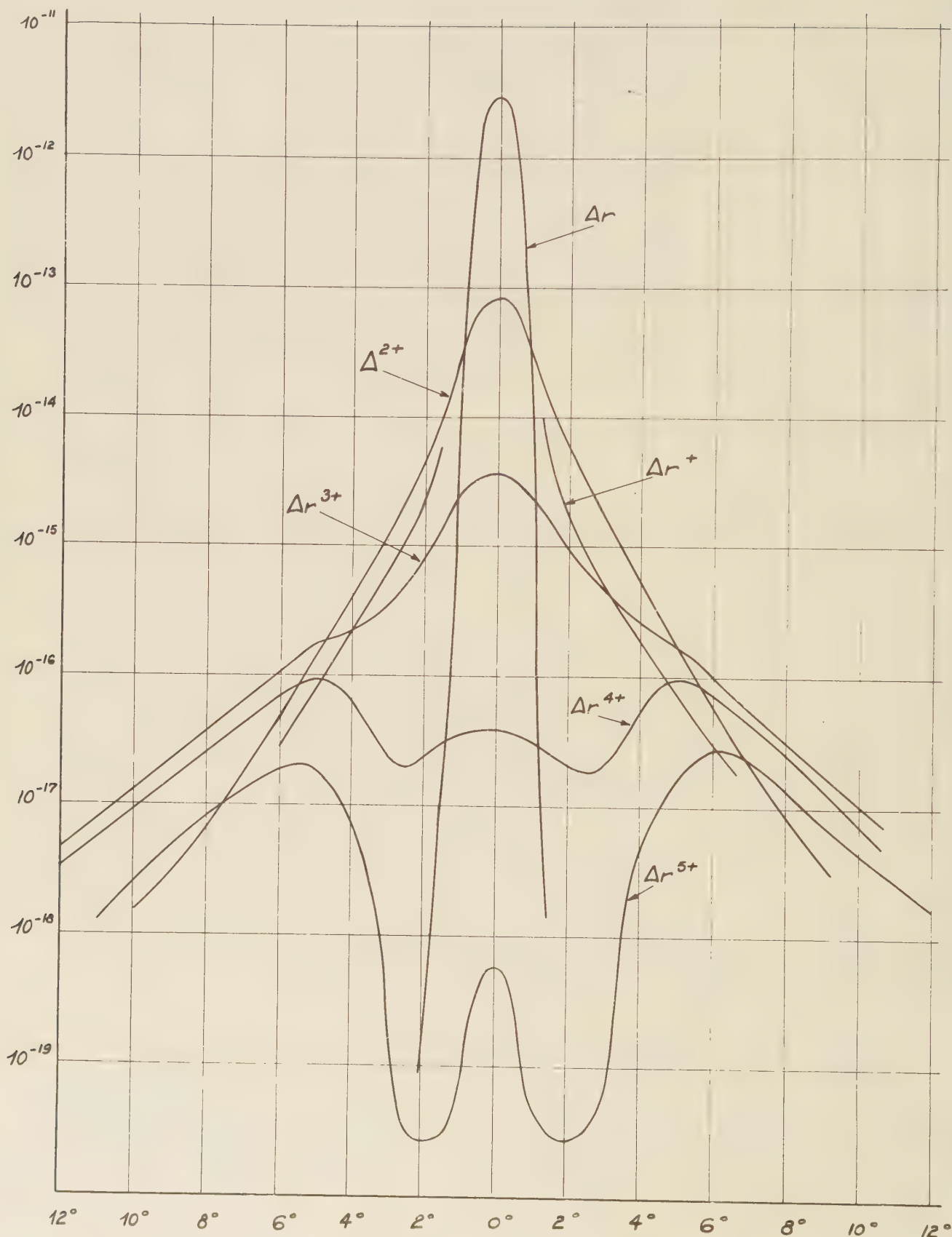


Fig. 13 - Distribution angulaire de diffusion avec changement de charge dans de l'argon, d'ions d'argon de 75 keV d'énergie. (d'après Fedorenko)

Le principe de la méthode consiste à former un pinceau d'ions très délié et bien défini géométriquement et, au moyen d'une surpression locale d'un gaz donné, provoquer un certain nombre d'échanges de charges. Le résidu du faisceau primaire et les particules chargées provenant des autres types d'interaction sont déviés par un champ électrique transversal, alors que les neutres rapides seuls continuent leur chemin dans une direction moyenne qui est la direction du pinceau avant la déviation. La distribution angulaire des neutres est relevée au moyen d'un collecteur mobile fonctionnant sur le principe de l'émission électronique secondaire. Aussi longtemps que l'on ne s'intéresse pas aux valeurs des sections efficaces, toutes les mesures sont des mesures relatives. Il n'est donc pas nécessaire de connaître exactement la valeur de la surpression ni le taux d'émission des électrons secondaires au collecteur.

Le dispositif expérimental comprend un collimateur formant le faisceau délié primaire, une chambre de surpression, un condensateur défecteur, un collecteur de mesure. L'infrastructure du dispositif est le séparateur d'isotopes de Saclay (fig. 14 a).

a) Collimateur. Il comprend :

- un diaphragme carré A de 1 mm de côté (constitué en réalité par la partie commune de deux fentes croisées portées par des plaques parallèles et voisines) (fig. 14 b).
- un collecteur de centrage B en bout de l'appareil. Le trou de définition a un diamètre de 1 mm.
- un diaphragme auxiliaire C placé avant le champ magnétique et destiné à compléter l'action de A. Il comporte un système de réglage de la largeur des fentes (de 1 à 30 mm). En réalité, ce dernier diaphragme se compose de quatre plaques en forme de demi-lune solidaires de deux paires de joints de Wilson (une paire horizontale et une verticale) se faisant face deux à deux. Un système de butées règle l'écartement minimum des bords rectilignes des plaques (fig. 14 c).

Diverses chicanes D sont disposées dans la chambre du séparateur, dans le but d'interdire le passage des ions parasites. Ces chicanes constituant des résistances de pompage, l'enceinte de mesure est évacuée par une pompe indépendante (Edwards 403).

b) Chambre de surpression E. C'est un cylindre métallique de 5 cm de longueur et de 2 cm de diamètre, que le pinceau d'ions traverse dans le sens de la longueur, en passant par deux trous de 5 mm de diamètre pratiqués au centre des bases. Cette chambre est solidaire d'un tube qui sert à amener le gaz ; ce tube coulisse dans un joint de Wilson porté par la paroi de l'enceinte et permet de régler le centrage de la chambre et aussi de l'éclipser complètement.

c) Condensateur-défecteur F. Il est situé immédiatement après la chambre de surpression. La tension appliquée est de 3 000 volts. Elle est plus que suffisante, compte tenu de l'écartement et de la longueur des électrodes, pour arrêter complètement toutes les composantes chargées du faisceau (fig. 14 d).

d) Collecteur de mesure G. Il est constitué par une boîte, parallélépipède rectangle, en feuille d'inox, dont la face d'entrée porte en son centre un trou circulaire de 1 mm de diamètre. Derrière ce trou, à l'intérieur de la boîte, se trouve une électrode de mesure. La boîte et l'électrode sont solidaires d'un tube glissant dans un joint de Wilson centré dans une flasque latérale. La connexion de l'électrode de mesure est sortie dans l'axe du tube au moyen d'un passage étanche à haut isolement en plexiglas. La boîte est polarisée à quelques dizaines de volts au-dessus de la masse, dans le but d'accélérer vers la boîte les électrons créés lors de l'impact des neutres rapides sur l'électrode de mesure et d'empêcher ceux qui sont créés sur les bords du trou de parvenir à l'électrode de mesure (fig. 14 e).

Les translations du collecteur sont repérées par un index et une règle. Comme le trou de la face d'entrée n'est pas sur l'axe du tube et que ce dernier a la faculté de tourner dans le joint de Wilson, on doit faire les mesures à azimuth constant, après avoir déterminé l'azimut qui permet d'atteindre le centre du phénomène. La constance de l'azimut est assurée de la façon la plus commode en contrôlant (au moyen d'un niveau à bulle) l'inclinaison d'une tige métallique solidaire de l'axe du tube et perpendiculaire à celui-ci.

B) Mode opératoire.

Le mode opératoire comporte les étapes suivantes :

- réalisation du pinceau délié primaire ;
- établissement de la surpression et élimination des composantes chargées ;
- relevé de la distribution angulaire des neutres.

a) Réalisation du pinceau primaire.

1) Le séparateur d'isotopes étant plein d'air on enlève la flasque terminale dans laquelle le collecteur B est centré, et on la remplace par un réticule. On aligne par visée optique le centre du ré-

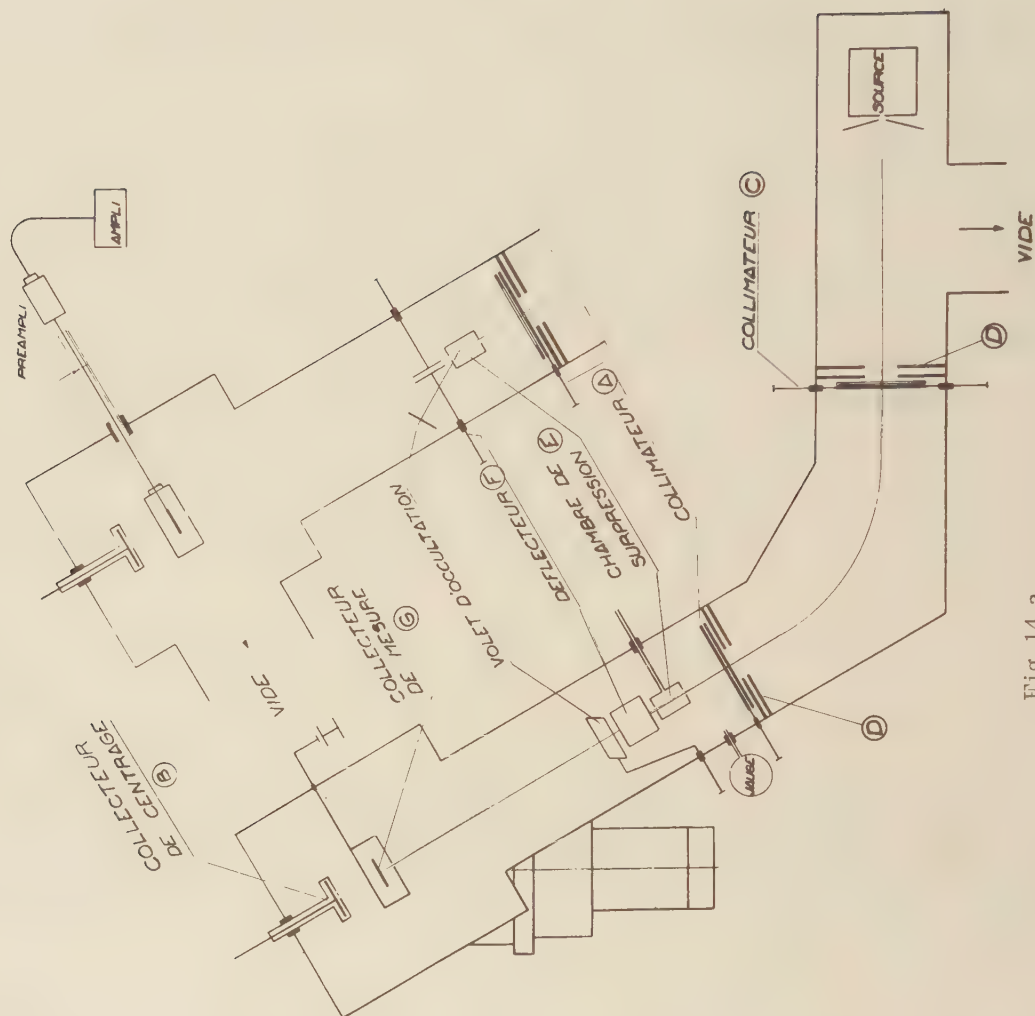


Fig. 14 a

Fig. 14 - Dispositif de mesure de la répartition angulaire de diffusion par neutralisation d'ions positifs accélérés.

- a) schéma de principe ;
- b) diaphragme de définition ;
- c) diaphragme auxiliaire ;
- d) chambre de suppression, condensateur défecteur et volet d'occultation ;
- e) collecteur de mesure.



Fig. 14 b



Fig. 14 c

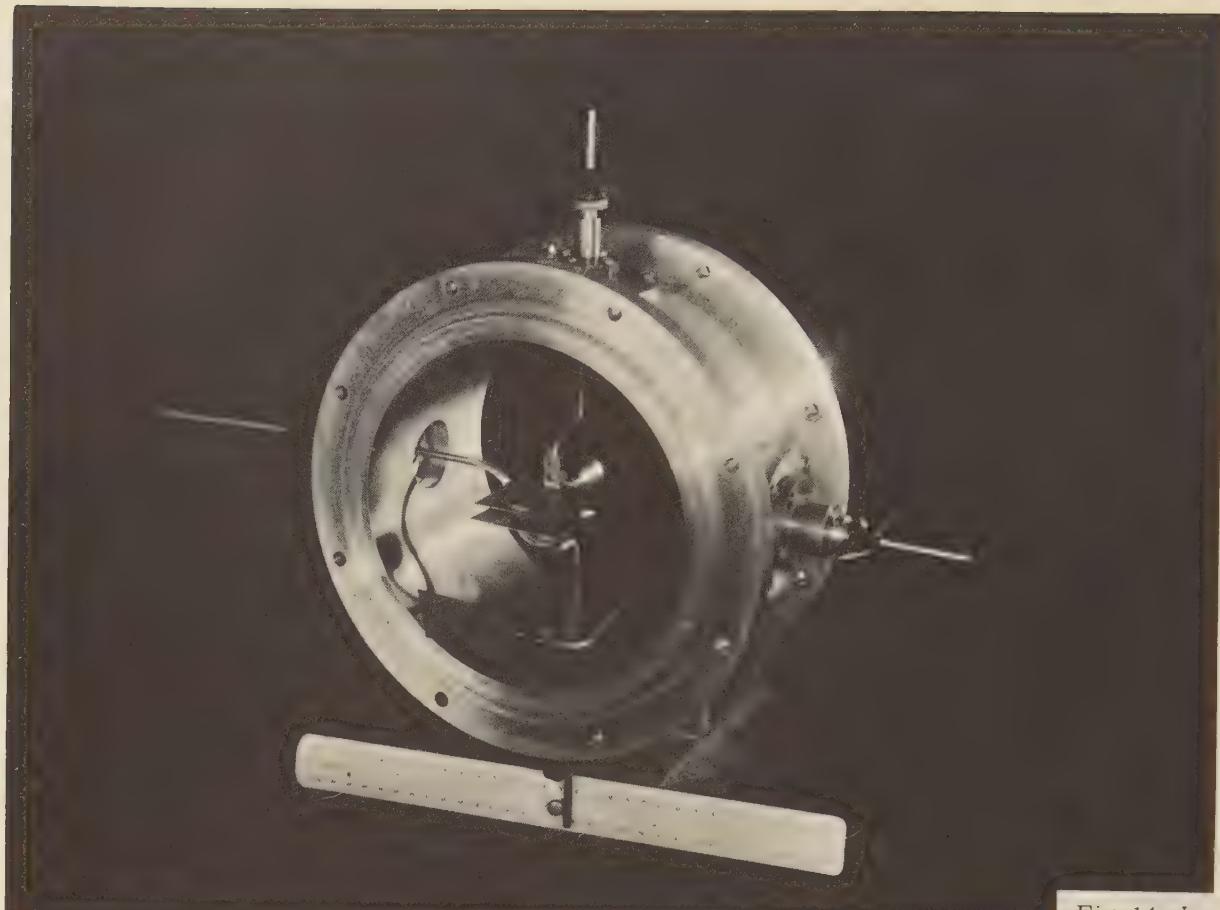


Fig. 14 d

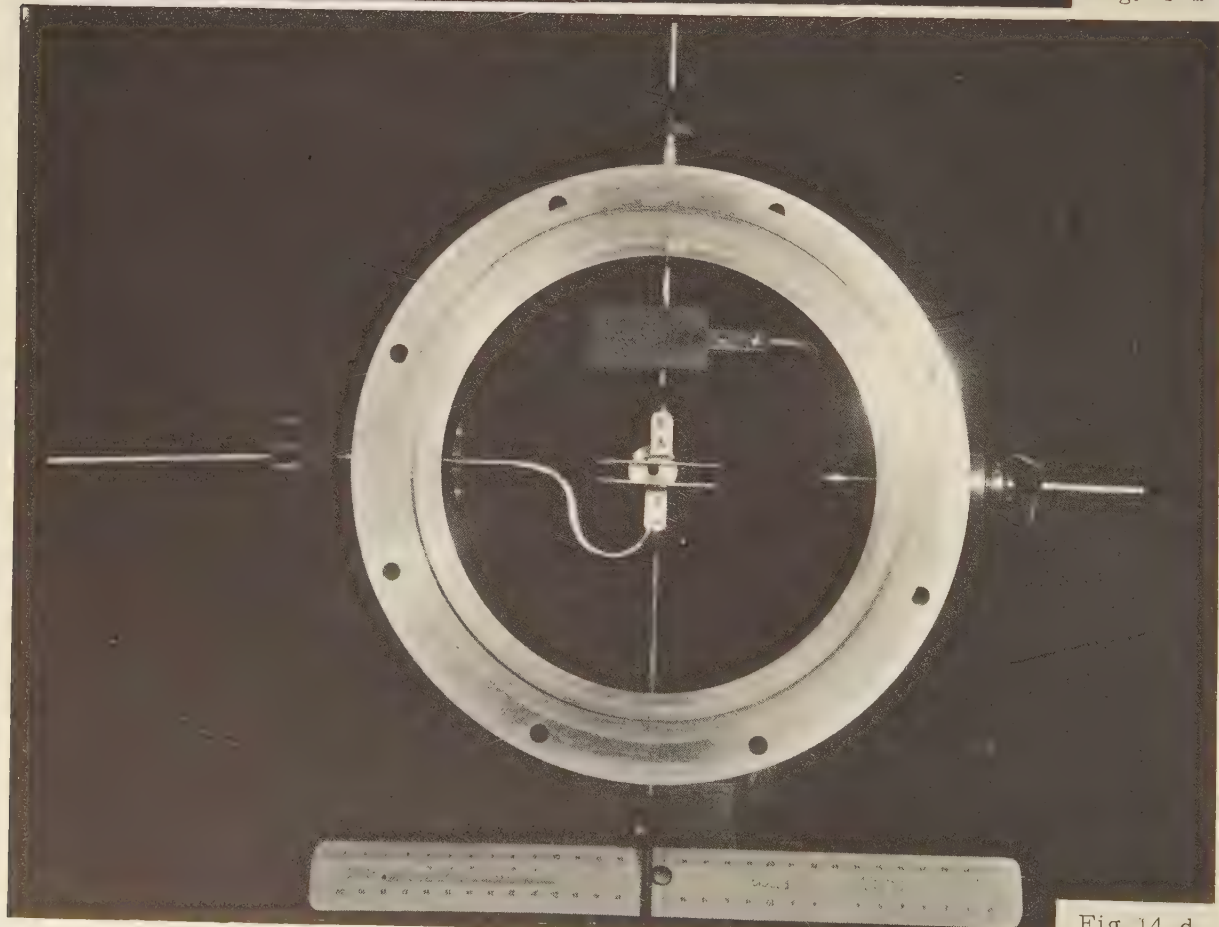


Fig. 14 d

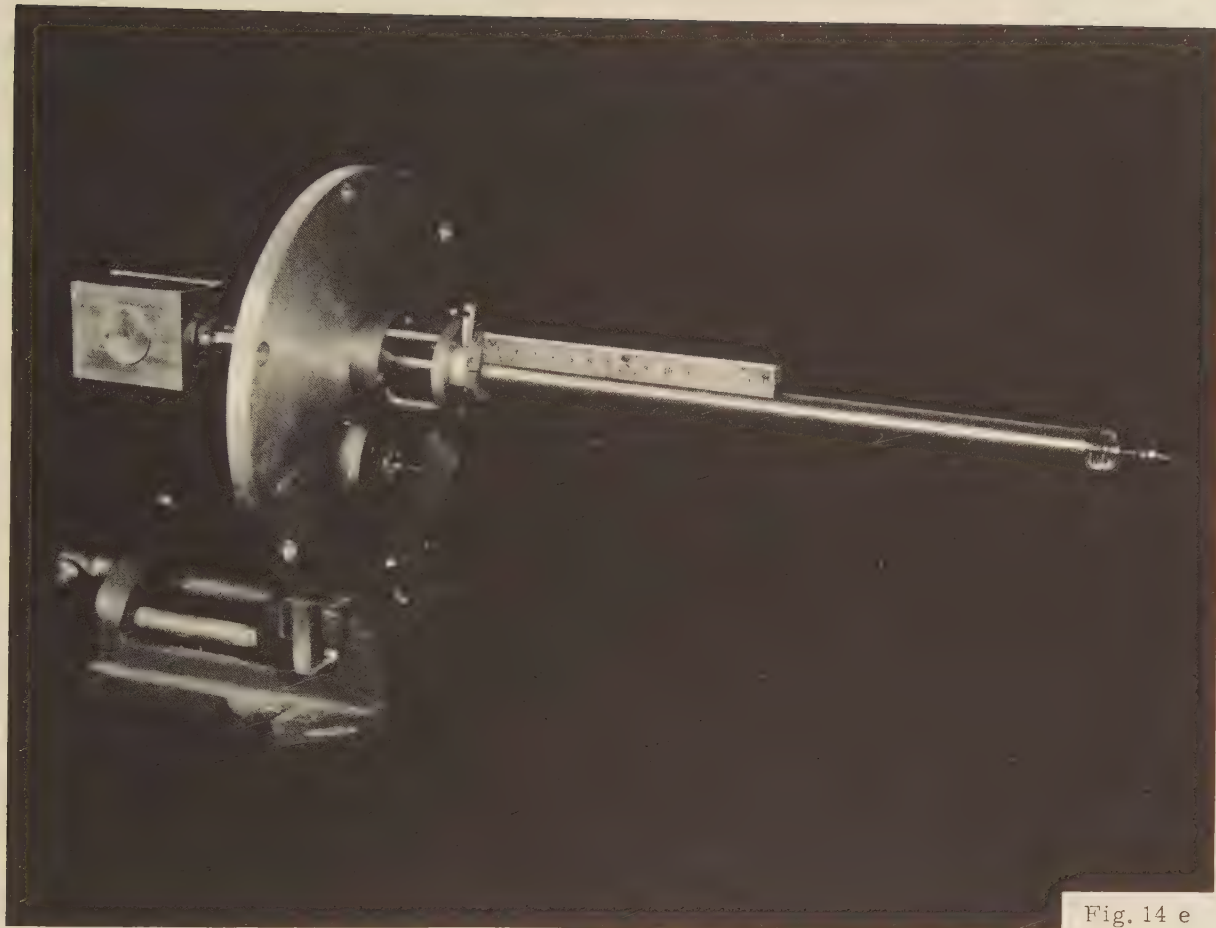


Fig. 14 e

ticule, le trou du diaphragme A, les centres des faces de la chambre de surpression. On règle la position des électrodes du condensateur. Pendant cette opération (a) et pendant la suivante (b), le collecteur de mesure est éclipsé.

2) On remet en place le collecteur B. On met l'appareil sous vide et on extrait un faisceau d'argon sous 30 kV. Le diaphragme C étant ouvert au maximum et les électrodes du condensateur F étant mises à la masse, on règle la valeur du champ magnétique jusqu'à obtention du courant maximum au collecteur B.

3) On rapproche par tâtonnements successifs, jusqu'à la distance minimum, les demi-lunes de C, en veillant à conserver le maximum de courant sur B.

b) Etablissement de la surpression et élimination des composantes chargées. Au moyen d'un robinet à fuites, on introduit dans la chambre de surpression de l'argon jusqu'à ce que le courant au collecteur ait diminué d'environ 20 %. On met le condensateur sous tension, ce qui a pour résultat d'annuler le courant sur B.

c) Relevé de la distribution angulaire. Il se fait après détermination de l'azimut, en mesurant le courant d'électrons secondaires au collecteur de mesure pour différentes positions de celui-ci, espacées de millimètre en millimètre. La distance du trou de G au centre de la chambre de surpression est de 600 mm, ce qui, compte tenu de la dimension des diaphragmes, introduit un élargissement instrumental de quelques minutes d'angle.

Les lacunes expérimentales sont assez nombreuses mais faciles à caractériser et à corriger. On pourrait envisager de commander par vis tous les réglages mécaniques, de réduire les dimensions des diaphragmes, d'introduire un troisième diaphragme de collimation analogue à C entre A et C, d'augmenter la sensibilité des mesures, etc.

La stabilité de la source a quelque peu laissé à désirer dans le cas de l'uranium. Plusieurs séries de mesures ont, de ce fait, été inutilisables. Une électrode de normalisation et l'intégration des mesures de courant auraient permis de surmonter cette difficulté.

d) Résultats. Les répartitions angulaires sont reportées sur les figures. Sur la figure 15 a, on notera la variation de l'élargissement en fonction de la masse du projectile à énergie constante et la répartition fourchue de l'uranium. Sur la figure 15 b, on peut constater le rapprochement des deux maxima de l'uranium quand l'énergie s'élève.

V - COMMENTAIRES ET DISCUSSION.

Les expériences préliminaires rapportées au début de ce chapitre portaient sur le molybdène. La raison de ce choix est d'ordre chronologique : ces expériences ont immédiatement suivi une longue séparation de tous les isotopes du molybdène. Il a donc été possible de les faire sans aucune complication d'appareillage. Au contraire, dans l'étude présente, j'ai préféré utiliser le palladium qui se présente plus favorablement au point de vue opératoire ; la source est plus stable et délivre des courants plus importants. De plus, le palladium-108 jouit du double avantage d'être relativement abondant (27 %) et de ne pas avoir de voisins immédiats. Enfin, son poids atomique moyen est plus voisin de celui du cadmium, sur lequel devront porter obligatoirement les expériences de contrôle. Le cadmium lui-même n'a pu être utilisé maintenant, car le fonctionnement des sources de cadmium est fondé sur un principe différent de la pulvérisation cathodique et elles sont longues à atteindre leur régime, ce qui les rend peu favorables à l'expérimentation.

Il apparaît donc que l'exploitation des résultats de l'étude sur la distribution angulaire reposera sur un postulat a priori discutable qui consiste en ceci que ladite distribution angulaire ne dépend, pour une énergie donnée, que de la masse des ions, et non de la nature chimique de l'élément qui leur a donné naissance. La validité, au moins en première approximation, de ce postulat sera établie par le résultat des expériences de contrôle.

La distance de la sortie du champ magnétique au collecteur est, dans l'appareil de Saclay, égale à 87 cm ($R \sqrt{3}$).

La distance des milieux des images de l'uranium-235 et de l'uranium-238 est de 6 mm environ. En confrontant ces chiffres avec la figure de diffusion par neutralisation de l'uranium, on constate que la distribution angulaire est assez largement ouverte pour justifier la contagion de l'uranium-235 par l'uranium-238.

Par contre, dans le cas signalé au chapitre II de la contagion du cadmium-114 par le cadmium-116, la dispersion au collecteur était d'environ 10 mm (et la répartition angulaire postulée identique à celle du palladium). La confrontation montre que la contagion par les neutres tombe au-dessous des valeurs mesurables.

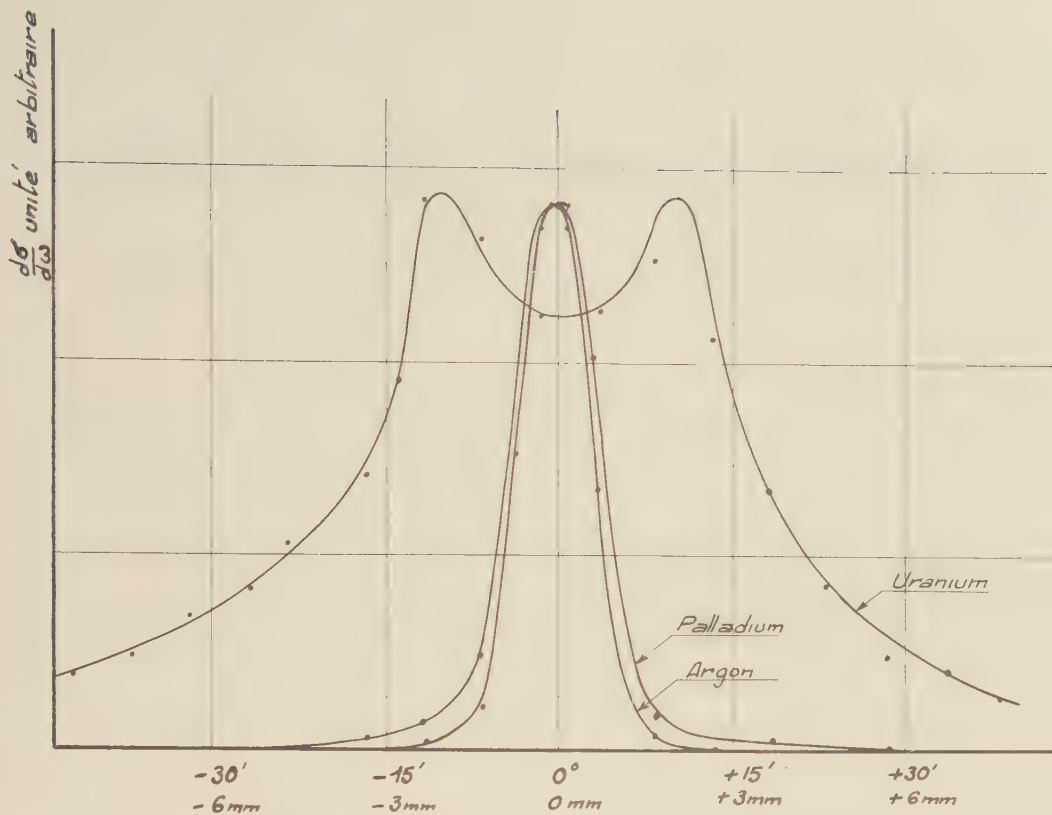
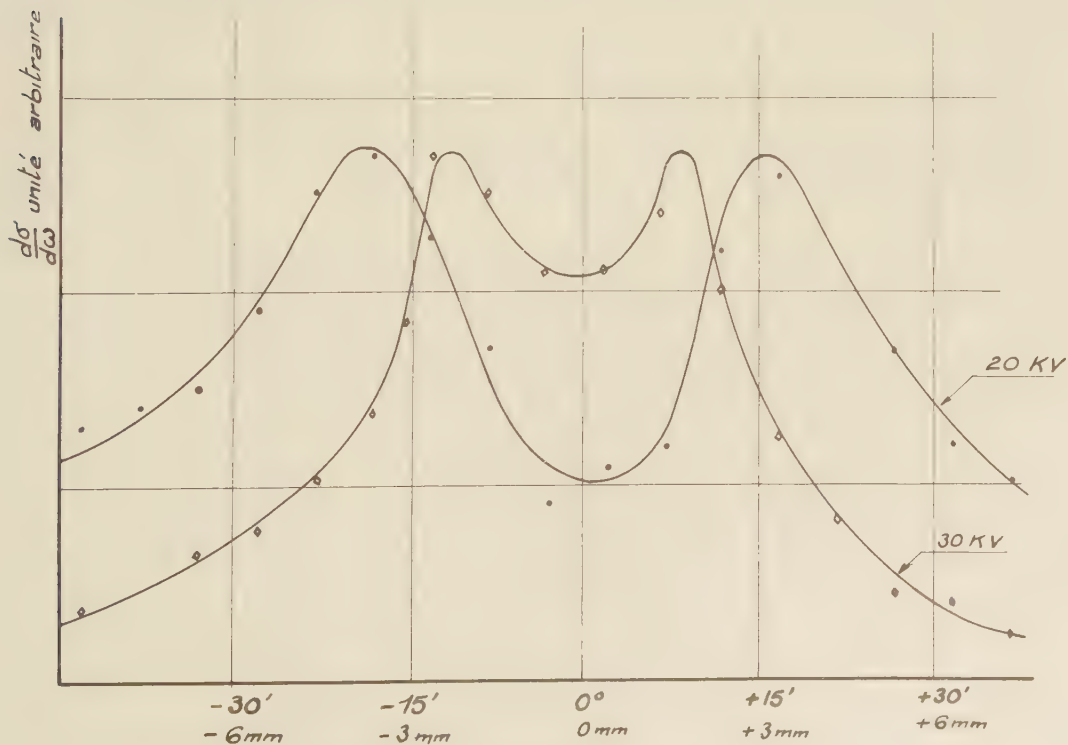


Fig. 15 - Répartition angulaire d'atomes rapides provenant de la neutralisation par collision avec des atomes d'argon d'ions positifs accélérés.

a) les ions positifs sont des ions d'argon-40, de palladium-108 et d'uranium-238, d'énergie 30 keV.



b) les ions positifs sont des ions d'uranium-238, d'énergie 30 et 20 keV.

La fonction de contagion ne pouvant être que dissymétrique, avec prépondérance de contagion par les isotopes plus légers, ce qui est contredit par le résultat brut obtenu, je dois admettre, au moins provisoirement, que l'importance des claquages a été sous-estimée.

En fait, la contagion préférentielle par les isotopes plus lourds ressort de la contagion rapprochée, comme je le démontrerai au chapitre V. Il a, cependant, été nécessaire de résoudre le problème technique des claquages avant de procéder aux expériences de contrôle, dont je rendrai compte dans le détail au chapitre VI.

CHAPITRE IV

EXPLOITATION DU SCHÉMA DE CONTAGION ISOTOPIQUE ÉLOIGNÉE

On peut exploiter de deux façons les résultats du chapitre III. Si l'on désire simplement améliorer le fonctionnement d'un séparateur donné, on se contentera de rechercher les modes opératoires en accord avec les conclusions précédentes. Dans le même ordre d'idées, on pourra envisager l'emploi d'un étage électrostatique en cascade, qui constitue une complication instrumentale relativement légère.

Il est également possible de déterminer, en fonction de ces conclusions, les bases logiques de construction des séparateurs d'isotopes en général, en réduisant la part de l'empirisme. Si les données fondamentales sont encore trop embryonnaires pour permettre le calcul complet de la contagion isotopique à partir des phénomènes élémentaires, nos connaissances sont suffisantes pour comparer les différents types d'appareils fonctionnant dans des conditions équivalentes. Il sera même possible de procéder à des extrapolations et de déterminer des types d'appareils nouveaux particulièrement prometteurs au point de vue de la réduction de la contagion isotopique.

Ces deux points de vue ne seront pas séparés dans la suite de ce chapitre, mais, en tout état de cause, la distinction est facile.

I - L'INFLUENCE DE LA PRESSION.

La reconnaissance de la nécessité de réduire le nombre des événements de diffusion et d'opérer sous une pression aussi basse que possible n'est, en fait, qu'une pétition de principe. Je supposerai néanmoins, dans ce chapitre, que la pression reste toujours suffisamment élevée pour maintenir à un niveau négligeable l'importance du phénomène de l'éclatement des faisceaux, que j'ai déjà mentionné, et sur lequel je reviendrai.

Une conséquence immédiate du mécanisme de contagion par diffusion est l'indépendance des facteurs de contagion vis-à-vis de l'intensité moyenne des faisceaux, toutes choses égales par ailleurs.

On peut envisager de réduire l'importance de la contagion due à l'échange de charge en abaissant préférentiellement la pression dans la région du collecteur. Mais les développements techniques auxquels on est conduit manquent de souplesse.

II - L'INFLUENCE DES PARAMETRES GEOMETRIQUES.

Les facteurs de contagion dépendent de divers paramètres géométriques, qui sont dans le cas des secteurs symétriques à champ uniforme : l'angle du secteur, le rayon de courbure dans le champ magnétique et la hauteur de l'entrefer. Il va sans dire que, dans l'analyse qui va suivre, les paramètres physiques suivants sont maintenus constants : pression de fonctionnement en valeur absolue et en composition, et énergie des ions, assurant la constance des sections efficaces et des distributions angulaires. Il s'ensuit que le produit du rayon par l'intensité du champ doit rester constant lors de la modification du rayon.

Compte tenu que l'essentiel de la contagion isotopique est dû aux phénomènes de diffusion avec neutralisation intervenant dans la partie des trajectoires située dans la région du collecteur et dans la zone attenante du champ de fuites magnétiques, les conclusions pourront dépendre de la masse des ions. Si la masse des ions est faible, la distribution angulaire de neutralisation est très pointue et l'efficacité de la zone de transition plus grande. La fonction de contagion est fortement dissymétrique, avec prépondérance de la contagion par les isotopes plus légers.

Si la masse des ions est élevée, la répartition angulaire de neutralisation est plus ouverte et la région proche du collecteur gagne en efficacité au point de vue de la contagion au détriment de la zone de transition. La fonction de contagion tend vers la symétrie. Je serai donc amené à discuter l'influence des paramètres géométriques dans les deux cas suivants :

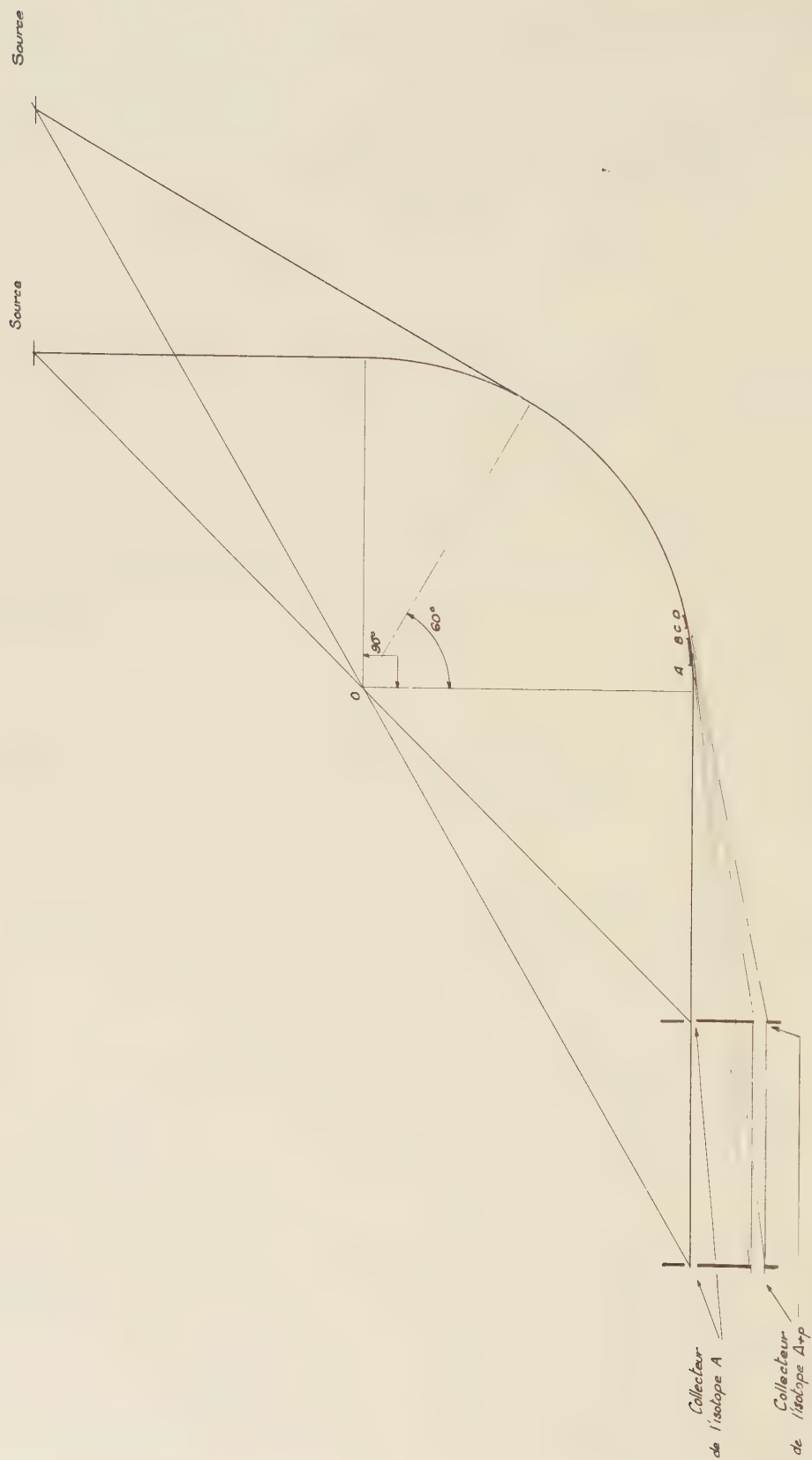


Fig. 16 - Principe de la détermination des facteurs de contagion.
 Les longueurs de trajectoires AB et CD représentent les facteurs de contagion de l'isotope A dans l'isotope A + p, dans le cas des sec-
 teurs à 60° et à 90° respectivement.

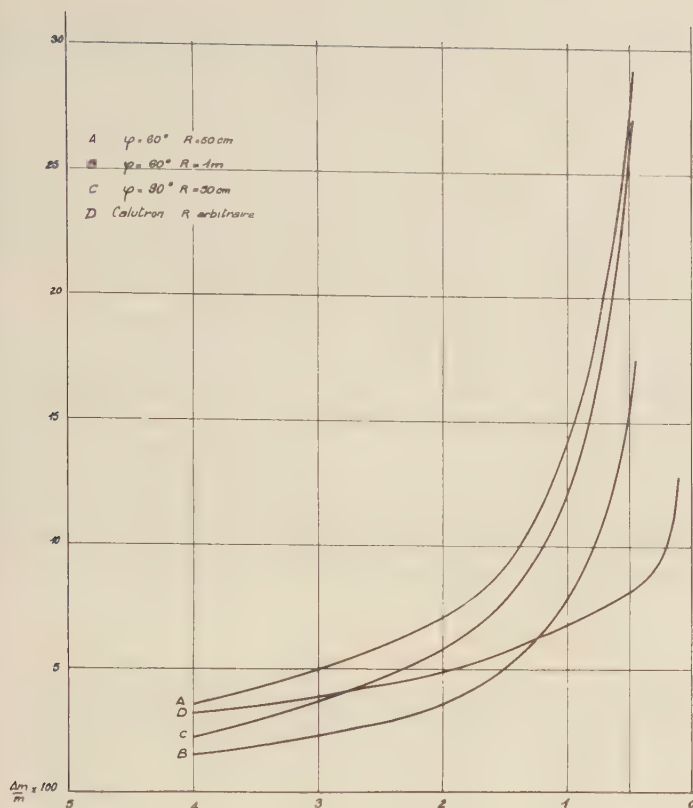


Fig. 17 - Résultats de la détermination des facteurs de contagion.

tre, si la distribution angulaire est très pointue, la correspondance point par point et la validité du théorème ne sont conservées que si les trajectoires dans la zone du champ de fuites sont bien homothétiques, c'est à dire si l'homothétie porte également sur la hauteur d'entrefer.

Je disjoints donc de la présente étude l'influence de la hauteur de l'entrefer dont la modification dans un rapport donné est équivalente à la modification du rayon dans le rapport inverse.

B) Influence des paramètres géométriques quand la distribution angulaire de diffusion est infiniment pointue.

Je considère uniquement la contagion par neutralisation, qui représente toujours la quasi totalité du phénomène. Les facteurs de contagion correspondants sont déterminés en unités arbitraires par une construction géométrique (fig. 16). Soit la trajectoire moyenne d'un faisceau isotopique de masse A, et les fentes d'entrée des collecteurs pour les isotopes de masse A + 1, A + 2, etc. Le facteur de contagion de A dans l'isotope A + p est proportionnel à la longueur de trajectoire ionique comprise entre les points de contact des tangentes menées à la trajectoire par les lèvres de la fente du p ième collecteur. Ce facteur de contagion est égal à celui de l'isotope A - p dans A, en vertu du postulat formulé à la fin du premier chapitre.

La trajectoire moyenne ionique se propageant dans l'axe de la tubulure de sortie a été construite d'après les valeurs du champ magnétique sur cet axe, relevées avec une sonde à effet Hall. Il a été trouvé que cette trajectoire est indépendante de la masse de l'ion qui la parcourt (il n'y a pas de saturation appréciable des pièces polaires de l'électro-aimant) même pour les valeurs les plus élevées du champ magnétique.

Pratiquement, la méthode graphique étant trop peu précise, les facteurs de contagion ont été déterminés par calcul numérique, utilisant directement le résultat tabulé de la détermination de la trajectoire.

a) Cas du secteur à 60°, de rayon 50 cm. Le collecteur est placé à 87 cm de la sortie du champ magnétique. La largeur des fentes est 1 mm, la dispersion est 5 mm par centième de masse.

b) Cas du secteur à 90°, de rayon 50 cm. On utilise la même trajectoire et on conserve la même dispersion linéaire, mais le collecteur est rapproché à 50 cm de la sortie du champ magnétique.

- d'une distribution angulaire de neutralisation infiniment pointue.
- d'une distribution angulaire suffisamment large pour annuler complètement l'efficacité de la zone du champ de fuites.

Les conclusions réelles seront intermédiaires entre les conclusions extrêmes, d'autant plus voisines des premières que les éléments considérés sont plus légers.

A) Règles d'homothétie.

Dawton a démontré (5) que, par suite de la compensation exacte entre le nombre de phénomènes de diffusion et la dispersion au collecteur, la largeur des fentes restant constante, les facteurs de contagion sont indépendants de la dispersion, c'est à dire restent invariants si l'on fait une homothétie sur le rayon. Par rapport à l'hypothèse qu'il a adoptée, qui consiste à rendre la seule diffusion sans variation d'état de charge responsable de la totalité de la contagion isotopique, son raisonnement est parfaitement valable. Il est également valable par rapport à la contagion par variation d'état de charge quand la distribution angulaire est très ouverte, puisque les parties des trajectoires efficaces quant à la contagion sont alors proches du collecteur, donc rectilignes, et se correspondent point par point dans l'homothétie. Par contre

c) Cas du secteur à 60° , de rayon 1 m. La distance du collecteur à la sortie du champ magnétique, ainsi que la dispersion, sont doublées par rapport à a). La trajectoire doit être transformée. En première approximation, la transformation consiste à diviser les ordonnées par 2.

d) Cas du calutron. Ce cas a été calculé séparément. On trouve que les facteurs de contagion sont indépendants du rayon.

Les résultats sont portés sur un diagramme (fig. 17). En abscisse l'écart de masse en pour cent, en ordonnées les facteurs de contagion en unité arbitraire, la même pour les quatre courbes. On constate la supériorité du secteur à 90° sur le secteur à 60° et l'influence favorable de l'accroissement du rayon.

C) Influence des paramètres géométriques dans le cas d'une distribution angulaire très large.

Quand la répartition angulaire de diffusion par neutralisation est largement ouverte, les régions efficaces quant à la contagion isotopique sont plus proches du collecteur. Les facteurs de contagion tendent vers l'indépendance vis-à-vis du rayon, et également, vis-à-vis de l'angle du secteur.

Un résultat plus complet ne peut être donné que par calcul numérique, en tenant compte des distributions angulaires réelles et également de l'atténuation des faisceaux ioniques consécutive à la diffusion. Ce dernier facteur n'a pas été pris en considération jusqu'à présent car il ne masque pas le contour général du phénomène de la contagion par neutralisation (*). Il est cependant susceptible d'atténuer les avantages provenant de l'augmentation du rayon dans le cas des masses légères. Par contre, il accentue l'avantage du secteur à 90° sur le secteur à 60° de même rayon.

III - LES CASCADES MIXTES.

Si l'on adjoint à un secteur magnétique un étage électrostatique en cascade, on supprime la contagion par échange de charge, mais on ne peut, quelle que soit la finesse de ce dernier étage, éliminer la contagion due à la diffusion sans échange de charge, qui s'effectue avec une variation d'énergie négligeable. La contagion résiduelle que l'on observe est due à ce type de diffusion.

L'étage électrostatique ne possédant pas de propriétés dispersives par rapport aux faisceaux de charge unitaire qu'il transporte, la diffusion, dans cet étage, de ces ions n'introduit aucune contagion isotopique. Il n'est pas de même pour la diffusion des neutres et des ions à plusieurs charges. Cependant, cette contagion pourra être négligée, car elle correspond au moins à deux phénomènes élémentaires de diffusion, un dans chaque étage, donc ressort du second ordre infinitésimal.

Soit "a" le facteur d'enrichissement du premier étage seul pour un nuclide A par rapport à un nuclide isotope B. Soit "a x b" le facteur d'enrichissement de la cascade mixte. Le coefficient "b", rapport de deux facteurs de contagion, chacun d'eux proportionnel à la pression, est indépendant de la pression dans le premier étage. L'efficacité additionnelle de l'étage électrostatique est donc indépendante de la valeur du facteur d'enrichissement du premier étage seul.

Par rapport à la diffusion avec conservation de l'état de charge, la région du champ de fuites ne joue aucun rôle particulier et la fonction de contagion d'une cascade mixte est symétrique dans tous les cas.

Dans le même ordre d'idées, le théorème de Dawton s'appliquant sans restriction à ce type de diffusion, l'enrichissement d'une cascade mixte est indépendant du rayon et de la hauteur de l'entrefer du premier étage. L'accroissement du facteur "a" par modification de ces grandeurs n'améliore pas l'enrichissement de la cascade (le facteur "b" enregistre une diminution compensatrice).

Remarquons également, ce qui nous sera utile par la suite, que, par rapport à l'état de charge nominal seul, on peut dire que le facteur d'enrichissement du premier étage est "a x b".

Sur le plan pratique, il n'est pas nécessaire d'avoir au deuxième étage une finesse comparable à celle du premier, pour la seule élimination des neutres et des ions à charge multiple. Ainsi est légitimée l'optique demi-stigmatique décrite au chapitre II.

Cette optique est cependant en défaut vis-à-vis des claquages, mais, outre que ceux-ci sont rarement très fréquents, on peut les pallier efficacement, par exemple en assurant par une commande automatique rapide l'effondrement du champ électrique à chaque claquage et en faisant un réenclenchement manuel.

(*) Il est équivalent de dire que l'atténuation est négligeable et que l'approximation infinitésimale du premier ordre est valable. L'infiniment petit principal est, dans le cas particulier, la probabilité de neutralisation d'un ion en vol.

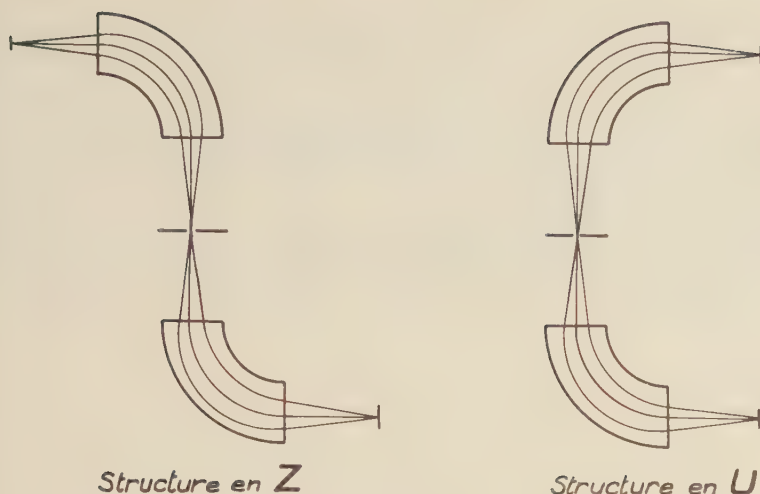


Fig. 18 - Principe des cascades magnétiques.
La dispersion totale de la cascade (si l'on supprime le diaphragme intermédiaire) est double de la dispersion de chaque étage dans le cas de la structure en Z et nulle dans le cas de la structure en U.

tat de charge initial. Nous avons vu que, par rapport à cet état de charge, l'enrichissement du premier étage seul était, non a_1 , mais $a_1 \times b$.

Par rapport aux faisceaux d'état de charge nominal des deux nuclides considérés, le deuxième étage intervient avec son coefficient propre et l'enrichissement est alors $a_1 \times a_2 \times b$.

La présence d'une cellule électrostatique entre les deux étages magnétiques ne modifie pas le résultat, mais si on la dispose à la suite du deuxième étage magnétique, on gagne encore le facteur b , par élimination de la contagion par échange de charge dans le deuxième étage et le facteur d'enrichissement global est $a_1 \times a_2 \times b^2$.

Faisons une application numérique. Dans la première séparation expérimentale d'uranium-235 décrite au chapitre II, on avait $a_1 = 20$, par rapport à l'uranium-238. La valeur de l'enrichissement atteinte par adjonction d'un étage électrostatique était un peu supérieure à 500, ce qui donne $b = 25$. Deux étages magnétiques en cascade, avec $a_1 = a_2$ donneraient un enrichissement de 10 000. Avec un étage électrostatique supplémentaire en queue, on aurait un facteur d'enrichissement de 250 000.

La valeur $a_2 = 20$ correspond à une performance très médiocre obtenue sous une pression de fonctionnement beaucoup trop forte. Les meilleures machines modernes pour éléments lourds travaillant dans les meilleures conditions ont des facteurs "a" de l'ordre de 1 000 pour le couple de référence. On voit les avantages des cascades de monochromateurs.

Si, au lieu de machines de performances moyennes, on accouple deux machines de haute performance, de nouvelles perspectives sont ouvertes. Par exemple, si l'on accouple deux séparateurs dont le facteur "a" est égal à 1 000, on aura un coefficient d'enrichissement de 25 000 000. Si on dispose en queue un analyseur électrostatique, la valeur du coefficient montera à 625 000 000.

Le tableau suivant donne, en fonction des divers coefficients d'enrichissement précédemment déterminés, les pourcentages d'uranium-235 dans le mélange ^{235}U et ^{238}U (on fait abstraction de l'isotope-234).

Coefficient d'enrichissement	Pourcentage isotopique	Coefficient d'enrichissement	Pourcentage isotopique
1	0,7	10 000	98,6
20	10,5	250 000	99,943
500	78	25 000 000	99,99943
1 000	87	625 000 000	99,99998

Naturellement, l'analyse qui précède n'est valable que si l'idée de base des cascades est respectée, c'est à dire si on s'interdit de collecter plus d'un isotope à la fois.

On remarquera qu'il est indifférent dans cette analyse de disposer les étages magnétiques en Z ou en U c'est dire d'ajouter ou de soustraire les dispersions des deux étages (fig. 18).

J'ai pris arbitrairement dans l'analyse précédente $a_1 = a_2$. En fait, l'absence de source sur le deuxième étage permettant d'abaisser la pression, on aura sans peine $a_2 > a_1$.

IV - LES PERSPECTIVES DES CASCADES DE MONOCHROMATEURS (25)

Par cascade de monochromateurs, j'entends maintenant des cascades comportant au moins deux cellules magnétiques.

Soient a_1 et a_2 les facteurs d'enrichissement donnés séparément par deux secteurs magnétiques pour un nuclide A par rapport à un nuclide isotope B.

Accouplons ces deux appareils. Je me propose de calculer l'enrichissement de la cascade, pour ce même couple de nuclides. La contagion par échange de charge dans le premier étage est annihilée par le second comme dans le cas des cascades mixtes, en sorte que l'on peut porter seulement l'attention aux ions ayant conservé l'état

La valeur de $b = 25$ est valable pour le couple $^{235/238}\text{U}$ avec une énergie cinétique de 30 keV et une atmosphère résiduelle d'argon.

Les valeurs élevées des facteurs d'enrichissement des cascades ne pourront être effectivement atteintes que si les deux étages sont également soignés au point de vue de la correction de l'imagerie et de la mise au point, alors que nous avons vu que la finesse de l'étage électrostatique d'une cascade mixte n'intervient pas directement dans le calcul de sa performance.

Pour ne pas alourdir l'exposé, les seuls analyseurs magnétiques considérés dans ce chapitre ont été des analyseurs symétriques à champ uniforme. Il est évident que l'emploi de structures de champs magnétiques différentes pourrait être envisagé avantageusement dans le cas des appareils isolés (26) et dans le cas des cascades.

CHAPITRE V

LA CONTAGION RAPPROCHÉE

I - L'ECLATEMENT DES FAISCEAUX D'IONS.

A) Réalité du phénomène et observation de phénomènes voisins.

En dehors des mécanismes banals que j'ai énumérés au chapitre III et que je continue de disjoindre, la diffusion n'est pas le seul mécanisme responsable de la contagion isotopique. En effet, les comptes rendus d'expériences faites sur un certain nombre de séparateurs d'isotopes ont mis en évidence le fait suivant : si on tente de diminuer l'importance de la diffusion en abaissant la pression de fonctionnement, à un certain moment on constate que la résolution se détériore et que l'intensité arrivant au collecteur diminue. Il y a, en quelque sorte, éclatement des faisceaux ioniques et on doit, dans la pratique, s'interdire de travailler sous une pression trop basse. La meilleure pression est, en moyenne, de l'ordre de $1 \text{ à } 2 \times 10^{-5}$ millimètre de mercure. Ce phénomène n'a pas été observé sur le séparateur de Saclay par suite, probablement, de l'insuffisance de la vitesse de pompage ou des particularités d'application des orifices d'évacuation mais son existence ne peut être mise en doute.

Un autre phénomène rapporté dans la bibliographie est également inexplicable dans le cadre d'un mécanisme de contagion par diffusion et doit être rapproché des observations précédentes.

Il s'agit de la prépondérance de la contagion par les isotopes plus lourds, prépondérance à courte portée qui se dégage quand on dépouille les catalogues d'isotopes enrichis. Les appareils producteurs sont, dans ce cas, des calutrons, mais le phénomène a également été signalé dans le cas du séparateur Hermès. (*)

L'explication communément admise consiste en l'intervention des claquages et du traînage d'énergie des sources. Je n'ai pu la réfuter qu'après avoir observé le phénomène sur l'appareil de Saclay.

En effet, la comparaison des résultats obtenus dans deux séparations de mercure-201, faites à plusieurs mois d'intervalle, m'a permis de caractériser ce phénomène.

Résultats de l'analyse isotopique de mercure-201.

		198	199	200	201	202		204
Abondances isotopiques	6/1957	0,43	0,77	2,32	89,1	6,17		0,48
	4/1958	0,107	0,389	3,59	85,9	9,87		0,098
Facteurs de contagion	6/1957	0,0063	0,0067	0,015	1	0,034		0,011
	4/1958	0,0016	0,0034	0,024	1	0,051		0,0022

Les conditions de la deuxième séparation étaient en tous points meilleures que celles de la première. La pression était plus basse, la source plus stable, la résolution meilleure autorisant des fentes plus fines, la stabilité de toutes les alimentations avait été améliorée, etc.

On constate, sur les tableaux précédents et sur la figure 19, la diminution des facteurs de contagion pour les isotopes en bout de spectre, soit 198 et 204, en passant de la première séparation à la deuxième. Par contre, pour les masses proches, on constate que les facteurs de contagion ont augmenté. Le dia-

 (*) Le dépouillement systématique des catalogues et publications a été fait récemment par M. Bernas, dans le cadre d'une monographie. C'est de son travail qu'est extraite la présente information.

◇ résultats
juin 57

○ résultats
Avril 58

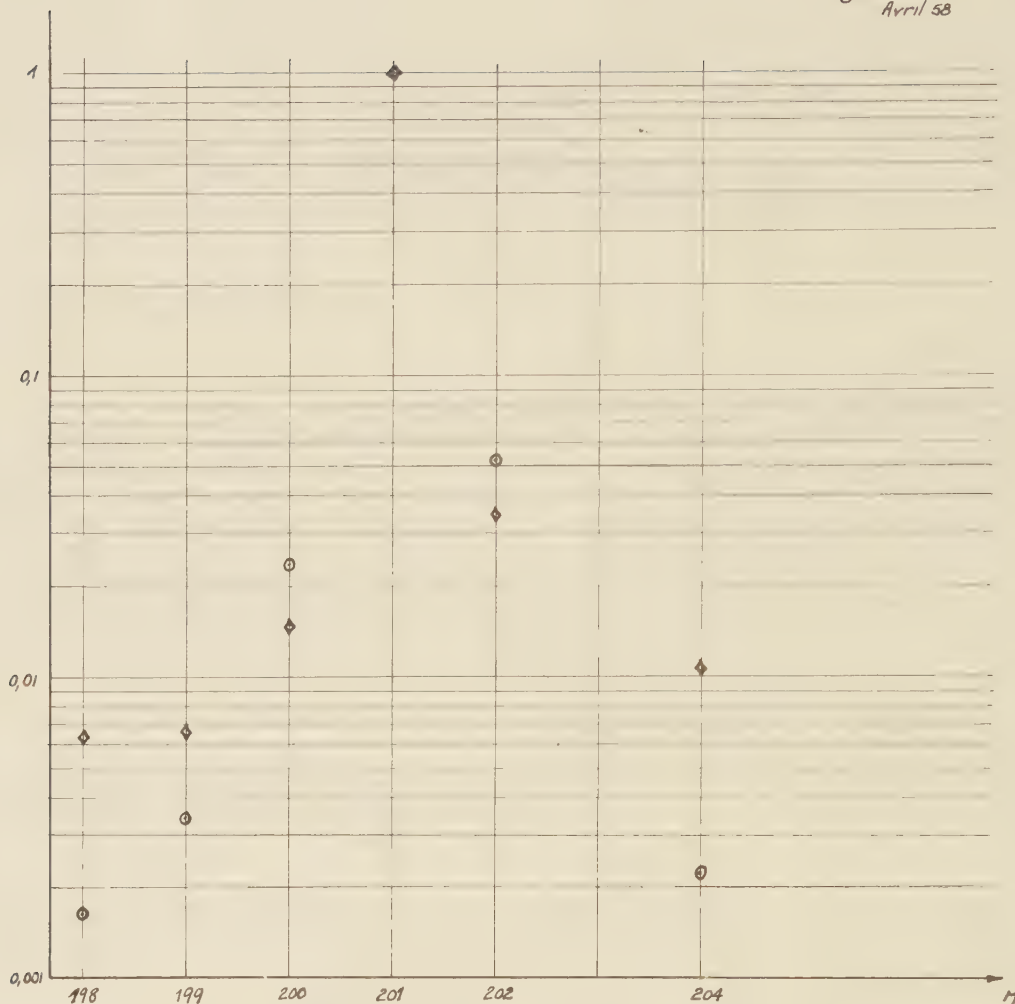


Fig. 19 - Diagrammes de contagion du mercure-201.

gramme de contagion se déforme. La prépondérance de la contagion par les isotopes plus lourds est manifeste.

Les conditions expérimentales exceptionnellement bonnes de la deuxième séparation, comparée à la première, excluent l'intervention des claquages et du chromatisme de la source (*), et mettent en évidence un phénomène nouveau, production de contagion à courte portée.

B) Le résidu aléatoire de charge d'espace.

L'hypothèse à laquelle j'ai fait appel pour expliquer la contagion rapprochée n'est pas entièrement inconnue en matière de séparation électromagnétique des isotopes.

Le phénomène d'éclatement des faisceaux est causé par l'existence d'un résidu aléatoire de charge d'espace le long des trajectoires, causé lui-même par les fluctuations d'intensité des courants ioniques.

Ce résidu de charge d'espace détériore les propriétés de focalisation du séparateur ; il en résulte un élargissement plus ou moins important et un chevauchement des faisceaux isotopiques et, en conséquence, une perte de résolution qui devient un véritable éclatement dans toutes les directions si le défaut est poussé à l'extrême.

L'origine des fluctuations d'intensité des faisceaux est l'instabilité des sources d'ions (28).

(*) Le chromatisme n'est réfuté directement comme mécanisme de contagion entre masses adjacentes, qu'aux environs de la masse 100. Pour le réfuter aux environs de la masse 200, il est essentiel de procéder à cette comparaison.

Les sources d'ions des séparateurs électromagnétiques d'isotopes sont, à quelques exceptions près, des sources à décharge électrique dans un gaz ou une vapeur contenant l'élément dont on veut séparer les isotopes, pilotée par une cathode chauffée. La présence d'un champ magnétique, soit imposé organiquement sur les séparateurs à 180° (calutrons), soit surajouté délibérément sur les secteurs, permet, en abaissant la pression de fonctionnement de la décharge, à la fois d'accroître l'intensité du courant extrait et le rendement de la source.

Par contre, la présence de ce champ magnétique est à l'origine, par l'intervention de mécanismes encore mal connus, de l'apparition d'instabilités électriques dans la décharge (2). Ces instabilités, connues sous le terme général de "hash", peuvent être décelées en plongeant dans la décharge une sonde, polarisée négativement par rapport au plasma (on sait que le potentiel du plasma est approximativement celui de l'électrode la plus positive qui "voit" la décharge). Il apparaît alors sur la sonde, en plus d'un courant continu correspondant à la capture d'ions positifs et à l'émission d'électrons secondaires, un courant alternatif, dont le spectre de fréquence est étendu et comprend, notamment, des composantes dans la bande s'étendant de 10^4 à 10^5 cycles par seconde et dont l'intensité efficace, ou l'intensité crête à crête, peut servir à repérer arbitrairement le niveau du "hash" pour une valeur donnée de la tension continue.

Bien que des relations de phase soient toujours délicates à établir, on constate que le niveau du "hash" dans le faisceau est une fonction croissante de celui de la source. Ce dernier est une fonction, lentement puis rapidement croissante, du champ magnétique de la source, variant entre quelques dizaines et quelques centaines d'oersteds.

C) Influence de la pression.

Les mécanismes de neutralisation de la charge d'espace n'étant pas instantanés, les fluctuations d'intensité des faisceaux d'ions provoquent des fluctuations de la charge d'espace.

Quand on peut négliger les fluctuations d'intensité des faisceaux ioniques, la charge d'espace positive des ions rapides est neutralisée par des charges négatives lentes, créées par ionisation du gaz résiduel par le faisceau lui-même. L'accumulation des charges négatives est autorisée par une conformation adéquate du champ électrique accélérateur (interdisant la migration de ces charges vers la source). Le temps nécessaire à cette neutralisation (compté à partir de l'instant où le champ électrique a la configuration favorable), a été mesuré (11) ; il est inversement proportionnel à la pression et son ordre de grandeur atteint, dans des conditions normales, quelques dix millièmes de seconde. Quand les fluctuations d'intensité des faisceaux ne peuvent plus être négligées, deux cas sont à considérer :

a) Si la fluctuation est une augmentation d'intensité, il apparaît un excès de charge d'espace positive et le mécanisme de neutralisation est le même que précédemment. Le temps de neutralisation est également inversement proportionnel à la pression.

b) Si la fluctuation est une diminution d'intensité, il apparaît une charge d'espace négative par excès de charges lentes. Ces charges disparaissent par migration vers la paroi sous l'action du champ électrostatique qu'elles créent. Le temps de neutralisation que l'on peut définir dans ce cas est indépendant de la pression et il est facile de montrer qu'il est considérablement plus court que le temps de neutralisation défini au paragraphe précédent.

Il résulte de ceci que le résidu de charge d'espace issu de l'instabilité des faisceaux d'ions est, en moyenne, positif et est inversement proportionnel à la pression. Il est une fonction croissante de la profondeur de la modulation d'intensité des faisceaux. Tous ces faits ont été constatés expérimentalement (28).

II - ETUDE EXPERIMENTALE DE L'INFLUENCE DE LA PRESSION ET DE LA STABILITE DE LA SOURCE SUR LA RESOLUTION DES SEPARATEURS D'ISOTOPES (29).

J'ai étudié l'influence de la pression sur le profil du spectre de masses du palladium ; faute de pouvoir réaliser des pressions suffisamment basses pour observer l'éclatement des faisceaux dans un régime de source normal, j'ai opéré avec un niveau d'instabilité de la source supérieur à la normale, ce qui a déplacé vers les hautes pressions le domaine d'observabilité du phénomène. Par contre, la diffusion étant une fonction directement croissante de la pression, on risque de masquer plus ou moins parfaitement le phénomène étudié. En conséquence, j'ai utilisé le deuxième étage électrostatique pour faire les mesures de courant, éliminant ainsi la diffusion par variation d'état de charge.

La source d'ions, fonctionnant sur le principe de la pulvérisation cathodique, était entretenue par un débit constant d'argon. La pression dans le séparateur était ajustée par la manoeuvre des vannes des pompes secondaires. La pression dans la source, de l'ordre de quelques 10^{-3} mm de mercure n'était modifiée que de façon négligeable et le régime n'était pas affecté.

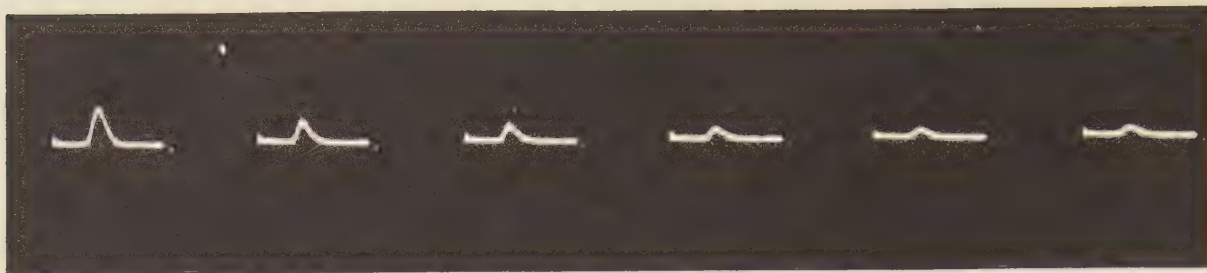


Fig. 20 - Relevé du spectre de masses du palladium (fragment).

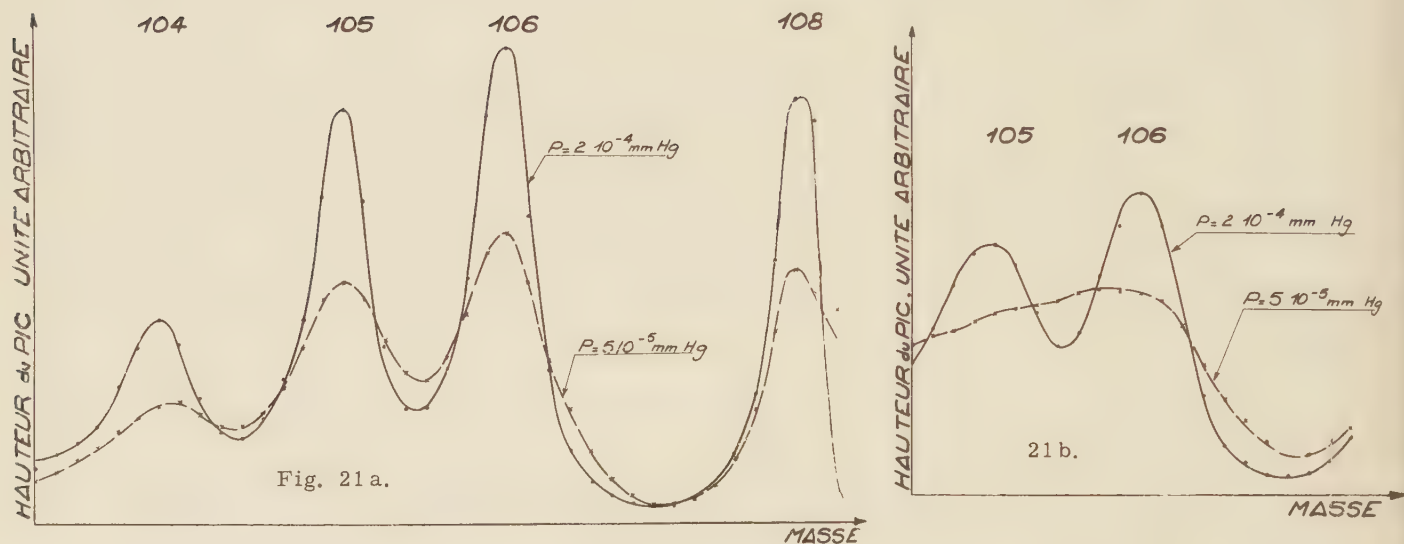


Fig. 21 - Spectres de masses du palladium relevé sous deux pressions différentes.
Le niveau d'instabilité de la source est plus élevé en b) qu'en a).

Le diaphragme intermédiaire et le collecteur final de mesures étaient équipés de fentes fines, respectivement de 0,2 et 0,1 mm de largeur, dans le double but d'accroître la définition et de limiter l'influence de la charge d'espace dans l'étage électrostatique. Le faisceau ionique, dans le premier étage, était fortement collimaté, dans le but de réduire l'élargissement instrumental.

Un double balayage en dents de scie a été utilisé pour cette expérience. L'un, très lent sur le champ magnétique principal, permet d'explorer le spectre de masses du palladium en quelques minutes, l'autre, à répétition plus rapide (5 secondes), est établi sur la tension du sélecteur électrostatique.

Le courant du collecteur est, après amplification, appliqué aux plaques de déflexion verticale d'un oscillographe cathodique, dont le balayage horizontal est synchrone du balayage de la tension de l'étage électrostatique. L'écran du tube est photographié à chaque récurrence. On obtient ainsi un document dont

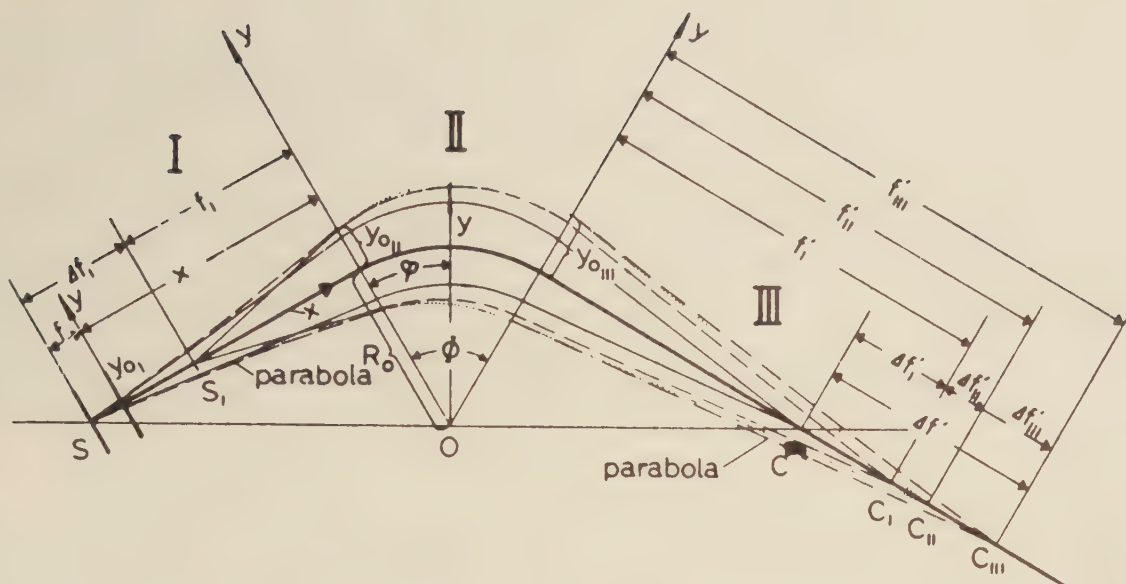


Fig. 22 - Trajectoire d'un faisceau d'ions à charge d'espace non compensée (d'après Walcher).

la figure 20 représente une partie. Le profil du spectre est relevé sur un diagramme obtenu en portant en abscisses le rang de la récurrence, en ordonnées l'ordonnée maximum des pics de ce document. La précision a été améliorée par l'emploi d'un agrandisseur photographique. La figure 21a représente les profils d'une partie du spectre de masses du palladium, obtenus pour un régime donné de la source sous des pressions de $5 \cdot 10^{-5}$ et $2 \cdot 10^{-4}$ mm de mercure. La figure 21b a été obtenue, sous les mêmes pressions, avec un régime différent de la source. On constate que, dans les deux cas, la structure du spectre est détériorée par l'abaissement de la pression.

L'information précédente a été complétée en modifiant quelque peu les termes du mode opératoire. Le balayage magnétique étant supprimé, l'appareil a été aligné sur le pic du palladium-108 (relativement isolé de ses voisins). La mesure de l'intensité était faite comme précédemment.

Le régime de la source étant stable, il a été constaté que l'augmentation de la pression dans l'étagage magnétique entraînait une diminution de l'intensité par intervention évidente de l'atténuation due à la diffusion. Quand le niveau du hash dans la source était plus élevé, l'augmentation de la pression entraînait une augmentation de l'intensité, caractéristique d'une reconcentration géométrique des faisceaux, malgré une diffusion accrue. Les variations de l'intensité étaient respectivement - 20 % et + 80 % environ, dans les expériences précédentes.

L'hypothèse de départ est en accord avec les résultats de ces simples expériences qualitatives. Seules diffèrent les valeurs du niveau de l'instabilité et de la pression. Elles sont très inférieures pour un séparateur opérant dans des conditions normales, mais la description du phénomène de perte de résolution et d'éclatement des faisceaux est la même dans les deux cas.

Ces expériences doivent être rapprochées d'une expérience analogue décrite au chapitre III, avec le molybdène comme corps d'épreuve et sous des régimes de pression comparables.

III - COMMENTAIRES SUR LES EXPERIENCES ET LES HYPOTHESES PRECEDENTES.

A) Réfutation du chromatisme des sources instables.

L'opinion, suivant laquelle l'accroissement du niveau de "hash" dans une source, a pour conséquence une augmentation de la dispersion des énergies initiales, est assez répandue. Des mesures directes de chromatisme ont été faites dans la série d'expériences à laquelle je me suis déjà référé (30), et semblent avoir prouvé ce fait. Mais dans ce cas particulier, j'en mets le résultat en doute.

a) parce que lesdites expériences étaient faites par décélération partielle et analyse des quantités de mouvement après décélération, et que toute expérience de décélération introduit un élargissement instrumental important et difficile à mesurer,

b) parce que les expériences récentes (31), effectuées par spectroscopie interférentielle des décharges des sources de calutron, ne mettent en évidence aucun effet Doppler supérieur à quelques électron-

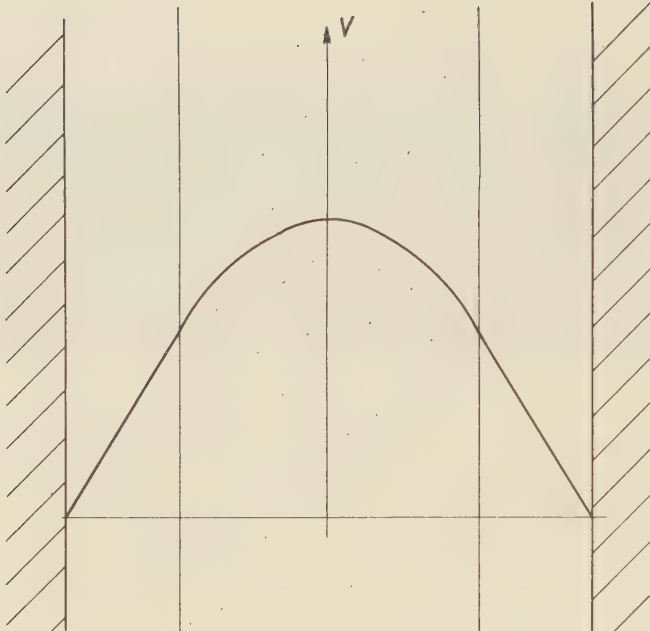


Fig. 23 - Distribution du potentiel électrostatique créé entre deux plans parallèles indéfinis et réunis électriquement par une charge d'espace positive de densité uniforme, limitée elle-même par deux plans parallèles. On suppose, de plus, que la figure possède un plan de symétrie. Le potentiel est représenté par l'ordonnée de la courbe tracée en traits pleins, qui se compose d'un arc de parabole prolongé par deux segments de droite. Le champ électrique, en un point donné, est représenté par la pente de la courbe.

correspondant à la même intensité. Si l'on compare les photographies correspondantes, on constate qu'elles sont exactement superposables, en position et en forme, bien que ne correspondant pas à des sommets de pics isotopiques. J'en déduis que l'élargissement instrumental rend compte, à lui seul, de la forme des signaux et qu'aucun chromatisme ne peut être rendu responsable, même partiellement, de la perte de résolution du séparateur, quand la source fonctionne dans un régime instable.

B) Mécanismes d'intervention de la charge d'espace.

L'ajustement d'un résidu de charge d'espace constant dans le temps est quelquefois, un moyen pratique de parfaire la mise au point d'un séparateur. Quand la partie aléatoire du résidu de charge d'espace devient prépondérante, la fluctuation de position des images se traduit par une perte de résolution par rapport à un collecteur dont la position est fixe. Les images isotopiques s'élargissent, en principe, symétriquement autour de leur centre de gravité. C'est là le mode d'intervention banal de la charge d'espace (fig. 22).

Il existe un mode d'action plus dissimulé qui ne semble pas avoir été pris en considération jusqu'à présent et qui, en se superposant au précédent, est susceptible d'expliquer la contagion préférentielle par les isotopes plus lourds, pour une égale différence de masse.

R. S. Livingston rapporte (32) que, lors de la mise au point d'un séparateur à haut enrichissement du type Calutron, le facteur d'enrichissement de l'uranium-235 par rapport à l'uranium-238 est passé de 200 à plus de 1 000 quand, toutes choses égales par ailleurs, on introduit dans la chambre deux nouvelles parois perpendiculaires au champ magnétique, dont l'écartement (soit 6 cm environ) autorise strictement le passage du faisceau. Avant l'introduction de ces écrans, le faisceau passait au centre de la chambre, dont la hauteur était de 28 cm. Livingston interprète l'effet du rapprochement des parois comme favorisant une neutralisation plus efficace de la charge d'espace, par émission électronique secondaire des nouvelles parois léchées par le faisceau. Je propose une explication différente.

La figure classique de répartition du potentiel électrostatique dans un faisceau de densité uniforme et dont la charge d'espace n'est pas neutralisée est bien connue (fig. 23).

Il existe un champ électrostatique à l'intérieur, à la lisière et, par continuité, en dehors du faisceau. La circulation de ce champ jusqu'à la paroi est une différence de potentiel, fonction croissante de la distance des parois, toutes choses égales par ailleurs.

L'énergie totale (en électron-volts) d'un ion de charge unitaire du faisceau, est égale à la chute de

volts, quelque soit le régime de la source.

c) parce que le mode opératoire de comparaison polyisotopique que j'ai employé permet de tenir compte de l'élargissement instrumental.

Reprenons le document photographique de l'expérience précédente (fig. 20). En supposant nul l'élargissement instrumental et toute la perte de résolution due au chromatisme, l'aspect des signaux devrait être différent suivant qu'ils représentent le sommet d'un pic isotopique ou le fond d'une vallée. Dans le premier cas, on devrait avoir un pic central et, éventuellement, des pics satellites ; dans le deuxième cas, deux pics d'importance comparable et situés de part et d'autre du centre de l'écran.

L'élargissement instrumental est important dans ces expériences. Il se traduit par une largeur au pied des pics qui n'est jamais très petite et qui croît avec la hauteur du pic, par suite de l'intervention probable de la charge d'espace dans l'étagage électrostatique.

Considérons, dans la figure 21a, le point expérimental correspondant au sommet du pic de palladium-104. Il existe, dans la figure, d'autres points expérimentaux

tension accélératrice exprimée en volts, l'ion étant créé pratiquement au repos ; son énergie cinétique est égale à la différence entre cette énergie et l'énergie potentielle représentée par la différence de potentiel précédente. Le résidu de charge d'espace étant positif, le faisceau est ralenti (33) et ce, d'autant plus que les parois sont plus éloignées. Il va de soi que, si les parois se rapprochent ou si le faisceau tombe sur une cible au potentiel de la masse, l'énergie cinétique, lors du choc, redevient égale à l'énergie totale.

Si le faisceau est soumis à l'action d'un champ magnétique transversal, le rayon de courbure des trajectoires est inférieur au rayon nominal, ce d'autant plus que, pour un état de charge d'espace donné, les parois sont plus écartées. La variation aléatoire du rayon de courbure des trajectoires d'un faisceau d'isotopes entraîne un déplacement des images au collecteur, déplacement qui décroît quand les parois sont rapprochées du faisceau. Ainsi peut-on expliquer le résultat obtenu par R.S. Livingston en rapprochant les parois. Cet effet se superpose au mécanisme banal d'élargissement des images. Selon ce mécanisme, l'effet du rapprochement des parois serait inversé dans le cas d'enrichissement de l'uranium-238 par rapport à l'uranium-235, étant donné le signe constant du résidu aléatoire de charge d'espace. Mais Livingston ne donne aucune information à ce sujet.

IV - LA CONTAGION ISOTOPIQUE DUE AU "HASH".

L'élargissement aléatoire des images au collecteur sous l'effet des fluctuations d'intensité des sources est une cause de contagion isotopique. Le diagramme de contagion reproduit, à une symétrie près le profil de la densité moyenne d'un faisceau au collecteur ; on peut définir, pour les couples d'isotopes, des facteurs de contagion C_h . Ces facteurs sont, toutes choses égales par ailleurs, inversement proportionnels à la pression.

La fonction de contagion est la somme d'une composante symétrique, due au mécanisme banal, et d'une composante favorisant les isotopes plus lourds, due à l'influence électrostatique des parois sur les trajectoires les moins marginales des faisceaux. L'importance relative de ces deux composantes est variable. La première est favorisée par la présence de faisceaux parasites ou de soutien.

Etant donné que le chromatisme est toujours négligeable, un étage électrostatique en cascade n'atténue pas la contagion due au "hash". Par contre, un étage magnétique supplémentaire redisperse les quantités de mouvement et est efficace pour la diminution de la contagion.

Problèmes d'intensité.

Le niveau de la contagion due au "hash" dépend, par l'intermédiaire du résidu de charge d'espace, du niveau des fluctuations d'intensité des faisceaux d'ions, mais non, a priori, de l'intensité moyenne. Cependant, ces grandeurs sont généralement liées.

a) Dans la mesure où l'on peut augmenter le débit moyen d'une source en laissant constant le niveau relatif du "hash", le C_h est proportionnel à l'intensité moyenne. Dans la pratique, le niveau des fluctuations croît plus vite que l'intensité moyenne. Il s'ensuit que la contagion due au "hash" est une fonction rapidement croissante de l'intensité.

b) Considérons une cascade magnétique, dont le premier étage sélectionne un isotope particulier. L'intensité moyenne étant plus faible dans le deuxième étage, les fluctuations d'intensité dans le second étage sont inférieures aux fluctuations dans le premier, et la contagion due au "hash" est moins importante, si les pressions dans les deux étages sont les mêmes.

CHAPITRE VI

LE SCHÉMA GLOBAL DE CONTAGION ISOTOPIQUE

I - FORMULATION ET EXPLOITATION DU SCHEMA GLOBAL.

Il ressort de ce qui précède que les conclusions du chapitre IV, établies à partir d'expériences effectuées à pression relativement élevée, ne peuvent être extrapolées aux pressions très basses. On ne peut plus négliger la contagion due au "hash" s'il est possible d'approcher le domaine de pressions dans lequel les faisceaux éclatent.

Considérons l'enrichissement d'un nuclide A par rapport à un nuclide isotope B et revenons à la notation des facteurs de contagion. A la contagion par diffusion s'ajoute la contagion due au "hash".

$$C = C_d + C_h$$

Nous avons vu que, en première approximation, C_d est proportionnel à la pression et indépendant de l'intensité et que C_h est inversement proportionnel à la pression et proportionnel à l'intensité.

A) Influence de la pression pour un appareil isolé.

Le facteur global de contagion est minimum pour une certaine valeur p_0 de la pression. On voit aisément que les facteurs de contagion C_d et C_h sont alors égaux (en effet, leur produit est indépendant de la pression).

J'appelle C_0 , C_{d_0} et C_{h_0} les valeurs de C , C_d et C_h obtenues sous la pression optimum p_0 .

La pression p_0 dépend du couple d'isotopes par rapport auquel le coefficient C est défini. La valeur minimum de C en dépend également. On peut ainsi expliquer la variation de forme des diagrammes de contagion quand on compare les résultats de séparations faites sous des pressions différentes.

Dans le même ordre d'idées, si l'on intervertit le rôle des nuclides A et B, la valeur optimum de la pression et la valeur maximum du facteur d'enrichissement ne sont pas nécessairement les mêmes.

B) Les cascades mixtes.

Posons $C_h = C_{d_1} + C_{d_2}$, C_{d_1} représentant la contagion par diffusion avec variation d'état de charge, et C_{d_2} la contagion par diffusion sans variation d'état de charge.

Avec les notations du chapitre IV, où "b" représente le rapport des contagions par diffusion C_d et C_{d_2} , nous avons :

$$C_{d_2} = \frac{C_{d_1}}{b-1} = \frac{C_d}{b}$$

Nous savons également que le C_h n'est pas atténué par un deuxième étage électrostatique.

Couplons un étage électrostatique à un séparateur fonctionnant sous la pression optimum p_0 , et soit C le facteur global de contagion, on a :

$$C = (C_{d_2})_0 + (C_h)_0 = \frac{(C_d)_0}{b} + (C_h)_0$$

Si b est grand, on a au mieux : $C = (C_h)_0 = \frac{C_0}{2}$

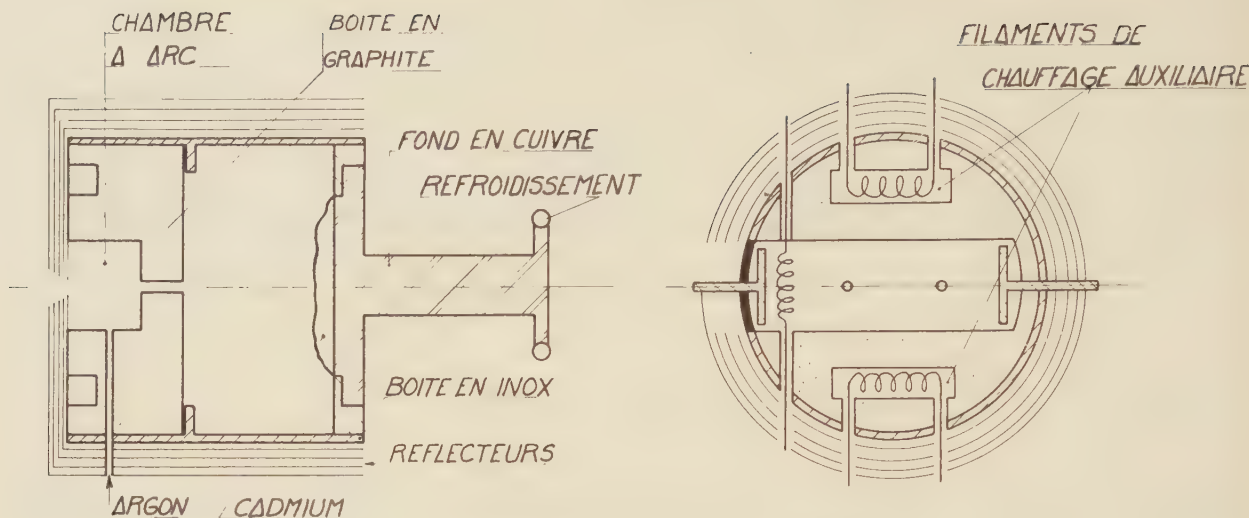


Fig. 24 - Schéma de principe de la source d'ions de cadmium.

Mais en raisonnant comme plus haut, on voit que si l'on opère, non plus sous la pression p_0 , mais sous $p_0 \sqrt{b}$, les deux termes de décomposition de C sont égaux. C est alors minimum et sa valeur est $\frac{C}{\sqrt{b}}$.

Application numérique : Prenons pour le couple d'isotopes $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$: $C_0 = \frac{1}{1\,000}$ (Hermès) et conservons $b = 25$. Le meilleur facteur d'enrichissement que donnera une cascade électrostatique sera de 5 000, mais la pression de fonctionnement du premier étage sera, dans ce cas, 5 fois supérieure à la meilleure pression de fonctionnement de l'étage magnétique seul.

C) Les cascades magnétiques.

Soient deux séparateurs électromagnétiques que nous nous proposons d'accoupler en cascade, en les faisant suivre, éventuellement, par un étage électrostatique.

Supposons les deux étages magnétiques identiques et soit p_0 la pression optimum du premier étage travaillant seul.

Il est évident que la pression optimum de fonctionnement du premier étage couplé au second doit être la même que dans le cas des cascades mixtes (correspondant à la contagion minimum par rapport à l'état de charge nominal) soit $p_0 \sqrt{b}$.

Soit m le rapport des intensités transmises dans le premier et le second étage. Supposons, pour simplifier, que la source délivre un faisceau isotopique pur, c'est à dire exempt d'ions parasites. " m " est alors l'inverse de la teneur isotopique du nuclide que l'on sépare.

Supposons que le deuxième étage travaille sous la pression p_0 . On a alors dans cet étage :

$$C = (C_0)_0 + \frac{(C_h)_0}{m} \text{ soit } \frac{C_0}{2} \text{ si } m \text{ est très grand.}$$

Mais en raisonnant comme précédemment, on trouve que l'optimum de pression est $\sqrt{m}$ fois plus faible que p_0 et correspond à une contagion $C = \frac{C_0}{\sqrt{m}}$.

Le facteur de la contagion de la cascade entière sera, dans ce cas : $C = \frac{C_0^2}{\sqrt{b m}}$.

Avec les hypothèses du chapitre IV, C était égal à $\frac{C_0^2}{b}$.

Si l'on adjoint à la cascade un étage électrostatique supplémentaire, on sera conduit à opérer sous la pression $p_0 \sqrt{\frac{b}{m}}$ dans le deuxième étage ; le facteur de contagion sera alors :

$$C = \frac{C_0^2}{b \sqrt{m}} \text{ au lieu de } \frac{C_0^2}{b^2}$$

Dans le cas de l'uranium-235, $m = 139$, $b = 25$. Le meilleur facteur de contagion n'est que deux fois environ supérieur au meilleur facteur calculé au chapitre IV. Pour l'obtention de cette performance, les pressions dans les deux étages magnétiques doivent être respectivement de $5 p_0$ et de $\frac{p_0}{2}$ environ.

Remarque :

Le facteur b a été déterminé dans une expérience effectuée à haute pression, en négligeant la contagion du "hash". Si l'on en tient compte, on peut, tout au plus, dire que la valeur mesurée est une limite inférieure. Il n'est donc pas exclu que les résultats des applications numériques soient pessimistes.

II - LES EXPERIENCES DE CONTROLE DU SCHEMA GLOBAL DE CONTAGION ISOTOPIQUE.

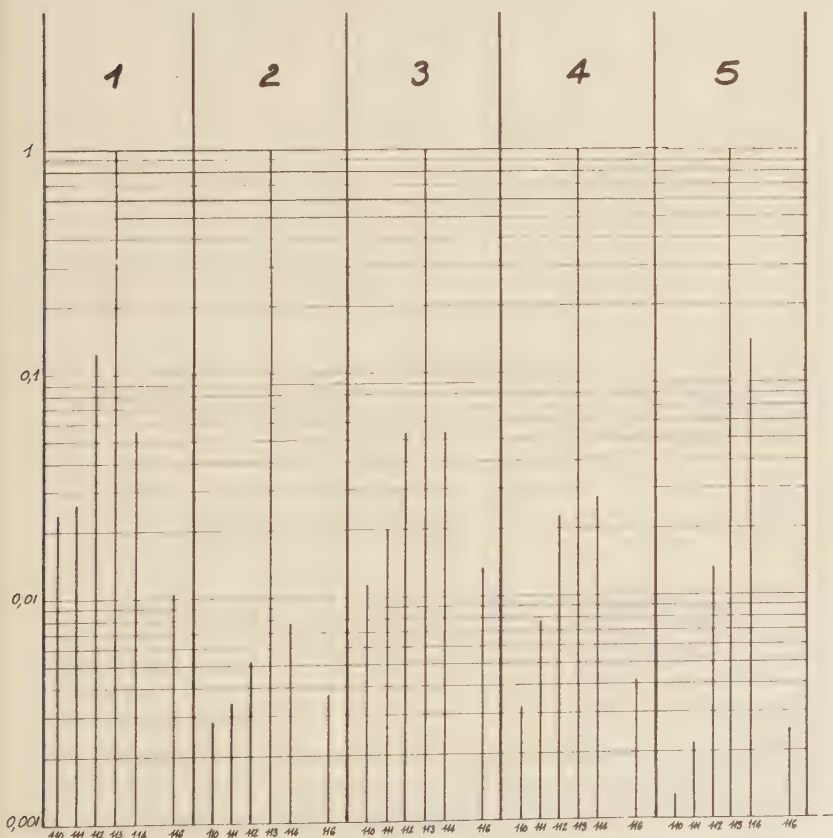
Pour éprouver la généralité des hypothèses et des raisonnements que j'ai été amené à faire, il importe de revenir au point de départ, en faisant porter les expériences de contrôle sur le cadmium.

Il est donc préalablement indispensable de réduire le nombre et l'intensité des claquages. La bibliographie et les communications verbales, complétées par l'expérience domestique, rapportent que les claquages sont rencontrés le plus fréquemment dans les séparations d'éléments solides dans les conditions normales, mais relativement volatils : magnésium, zinc, cadmium, tellure. Une interprétation plausible de l'origine de ces claquages consiste à supposer que la vapeur de l'élément se condense sur la paroi frontale de la source soumise au champ accélérateur et peut se revaporiser brusquement lors d'une surchauffe accidentelle de la paroi. La suppression locale produite permet le passage d'une étincelle.

En vue de remédier à cet état de choses, une source spéciale a été construite (fig. 24), quelque peu différente des sources ordinairement utilisées dans la séparation d'éléments volatils. La plaque frontale et la chambre d'arc travaillent à une température très élevée, excluant toute possibilité de condensation. Le four incorporé est reporté à l'arrière de la source, au point le plus froid. Le fonctionnement de cette source a répondu aux prévisions. Les claquages ont complètement disparu. La vérification de l'origine et de la disparition des claquages n'a pas été poussée plus loin.

A) Expériences de Saclay.

Le contrôle du schéma de contagion isotopique a été fait par analyse isotopique du mélange résultant de la collection du cadmium-113.



Le choix du cadmium-113 est le plus indiqué car, d'une part, il est au centre de l'éventail utilisable du spectre de masses du cadmium (110 à 116 ; les isotopes 106 et 108 étant trop peu abondants), ce qui permet d'explorer symétriquement la fonction de contagion, d'autre part, ses voisins immédiats sont plus abondants que lui, ce qui favorise les mesures d'abondance isotopique après enrichissement de l'isotope 113.

Les analyses isotopiques ont été faites par le laboratoire de Spectrométrie de masse, rattaché à la Section des Isotopes Stables du C.E.N. de Saclay.

Le cadmium-113 était recueilli dans un collecteur en cuivre massif, récupéré par attaque chimique superficielle et séparé du cuivre entraîné. Sous une forme chimique convenable, il était alors introduit dans la source du spectromètre de masse. A côté du cadmium, le spectromètre de masse a décelé la présence de zinc. De plus, l'analyse isotopique du cadmium a révélé la présence d'une faible quantité de cadmium naturel.

Fig. 25 - Diagrammes de contagion du cadmium-113 (expériences de Saclay).

Ce contretemps, dû à la négligence dans le choix du matériau formant le collecteur (cuivre impur) me permet de souligner l'avantage de la méthode de comparaison qualitative que j'ai définie au chapitre I. La présence de cadmium naturel ne change pas le sens des inégalités entre les facteurs de contagion et le résultat des analyses isotopiques est utilisable sans correction.

Première collection de cadmium-113.

L'étage magnétique travaillant seul, la pression dans la chambre était rendue aussi élevée que possible ($2,5 \cdot 10^{-4}$ mm de mercure) par injection continue d'argon dans la chambre du séparateur.

Deuxième collection.

L'étage magnétique travaille encore seul, mais sans injection d'argon. La pression est environ 10^{-5} mm de mercure.

Troisième collection.

Le premier étage travaille seul, avec une surpression d'argon moins importante que lors de la première collection. La pression est de l'ordre de 10^{-4} mm de mercure.

Quatrième collection.

On opère avec la cascade électrostatique, avec injection d'argon dans le premier étage. La pression a la même valeur que dans la troisième collection.

Cinquième collection.

On opère avec les deux étages. Il n'y a pas d'injection d'argon dans le premier étage. De plus, la source est dans un régime légèrement instable.

Résultats.

Les résultats sont présentés sur les deux tableaux suivants et sur la figure 25.

ABONDANCES ISOTOPIQUES

M	1	2	3	4	5
110	$1,7 \pm 0,2$	$0,28 \pm 0,01$	$0,91 \pm 0,01$	$0,40 \pm 0,1$	$0,10 \pm 0,01$
111	$1,9 \pm 0,2$	$0,34 \pm 0,04$	$1,61 \pm 0,02$	$0,72 \pm 0,01$	$0,17 \pm 0,01$
112	$17,2 \pm 0,2$	$0,97 \pm 0,02$	$8,4 \pm 0,1$	$4,03 \pm 0,03$	$1,89 \pm 0,02$
113	$68,9 \pm 0,5$	$96,4 \pm 0,1$	$78,4 \pm 0,2$	$88,7 \pm 0,1$	$72,6 \pm 0,3$
114	$9,3 \pm 0,2$	$1,81 \pm 0,03$	$10,1 \pm 0,1$	$5,90 \pm 0,05$	$25,1 \pm 0,3$
116	$0,8 \pm 0,1$	$0,22 \pm 0,03$	$0,64 \pm 0,02$	$0,31 \pm 0,01$	$0,11 \pm 0,01$

FACTEURS DE CONTAGION

M	1	2	3	4	5
110	0,024	0,028	0,0115	0,0045	0,0014
111	0,026	0,0034	0,020	0,0079	0,0023
112	0,125	0,0051	0,055	0,023	0,013
113	1	1	1	1	1
114	0,056	0,0080	0,055	0,028	0,15
116	0,018	0,0037	0,013	0,0041	0,0025

B) Expériences d'Orsay.

Il m'a été possible de procéder à une vérification complémentaire extrêmement significative, grâce à l'obligeance de M. Bernas qui a mis à ma disposition, pour une série d'expériences effectuées en commun, le séparateur d'isotopes de la Faculté des Sciences à Orsay. Ce séparateur est la première, et mo-

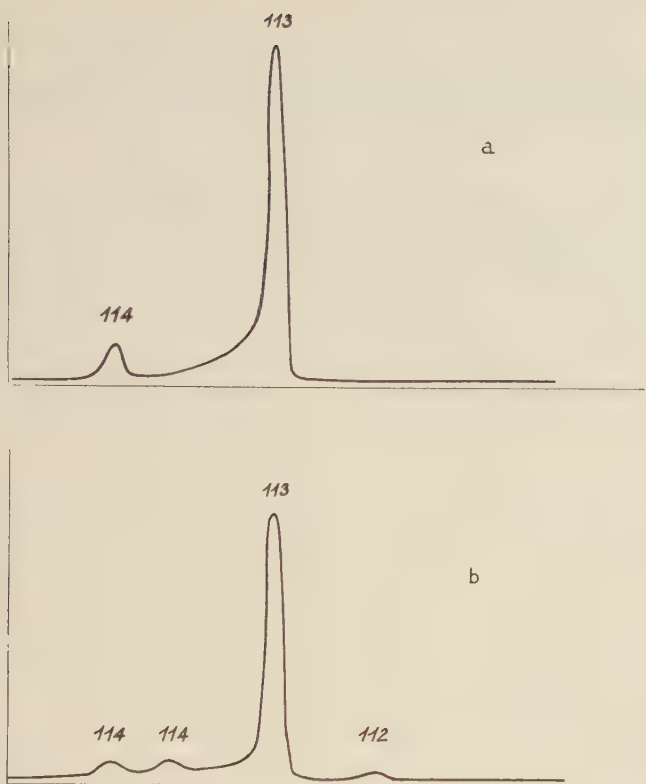


Fig. 26 - Spectre de masses du cadmium obtenu par balayage du champ magnétique du deuxième étage de la cascade magnétique d'Orsay, le premier étage restant aligné sur le cadmium 113.

- a) la pression dans le premier étage est basse.
b) la pression dans le premier étage est élevée.

mentanément unique, cascade magnétique existante. Le premier étage est un secteur identique au premier étage du séparateur de Saclay, le deuxième est un appareil à champ inhomogène assurant approximativement le stigmatisme pour une déviation un peu supérieure à 180° . L'image intermédiaire et l'image finale sont en dehors du champ du deuxième aimant.

L'opération a consisté à relever des spectres de masses par balayage du champ magnétique du deuxième étage, le premier étant aligné sur l'isotope 113 du cadmium. Cette opération est, en principe, équivalente à l'analyse isotopique du produit de la séparation par la cascade mixte, mais elle est plus sûre, plus rapide, ne nécessite pas l'intervention de chimistes, est insensible à la contamination du collecteur et permet de contrôler la constance du régime de la source.

Le deuxième étage magnétique s'est révélé imparfaitement corrigé du défaut d'ouverture, ce qui a, paradoxalement, constitué une circonstance favorable, en permettant l'observation d'un phénomène inattendu, lié à l'ouverture des faisceaux ioniques.

Dans des conditions normales, le spectre relevé est celui de la figure 26 a. A côté du grand pic du cadmium-113, il existe un pic plus petit qui est constitué par du cadmium-114. Pour s'en assurer, on aligne le premier étage successivement sur d'autres isotopes du cadmium et on constate la présence du pic satellite quand le premier étage est aligné sur les isotopes 110, 111, 112, 113, mais non 114 et 116. De plus, la hau-

teur de ce pic est proportionnelle à la teneur de l'isotope de masse immédiatement supérieure à celle de l'isotope sélectionné par le premier étage.

Quand la pression dans le premier étage est très élevée, on voit diminuer l'intensité du pic principal et du pic satellite ; en même temps, on voit apparaître deux pics approximativement symétriques par rapport au pic principal (fig. 26 b). L'attribution de masse est faite comme précédemment et on identifie ces pics comme étant dus à la diffusion sans variation d'état de charge des isotopes 114 et 112 du cadmium, alors que le premier pic satellite est le pic du "hash". Le fait que les deux pics du 114 ne sont pas confondus est attribué à l'incidence moyenne différente des trajectoires du pic du "hash", pour lesquelles la fente intermédiaire joue le rôle d'un diaphragme d'ouverture, et du pic de diffusion, compte tenu que le deuxième étage est mal corrigé du défaut d'ouverture. Si l'on introduit dans le premier étage un écran à une dizaine de centimètres de la fente intermédiaire et du côté des faisceaux de cadmium-110, 111, 112, on constate qu'il est possible de supprimer complètement le pic du "hash" du cadmium-114, alors que la hauteur du pic principal du cadmium-113 est inchangée, ainsi que celle du pic de diffusion du cadmium-114.

On trouve que la hauteur du pic du "hash" n'est pas proportionnelle à l'inverse de la pression, mais varie assez lentement sous pression élevée. Toutefois, le sens de la variation en fonction de la pression est une décroissance.

En ce qui concerne la contagion par les neutres, aucune expérience ne peut remplacer les analyses isotopiques faites au cours de la série d'expériences à Saclay. Mais la cascade magnétique permet d'explorer la fonction de contagion par les ions "strippés" et, même, d'atteindre directement le facteur correspondant d'autocontagion (il suffit de relever un spectre de masses par balayage du champ magnétique du deuxième étage, autour d'une valeur moyenne égale à la moitié de la valeur correspondant à l'état de charge unitaire).

Il n'a pas été possible de procéder à cette opération, ni même de relever avec plus de précision la fonction de contagion correspondant aux diffusions sans variation de l'état de charge, par suite d'une défaillance de l'appareillage de mesure.

III - COMMENTAIRES SUR LES EXPERIENCES DE CONTROLE.

A) Expériences de Saclay.

Les trois premières collections faites au moyen de l'étage magnétique seul, mettent en évidence la variation, en fonction de la pression, des facteurs de contagion de diffusion par neutralisation et de "hash".

Nous avons vu que le "hash" favorise, dans tous les cas, la contagion par les isotopes plus lourds, pour une égale de différence de masse, et que, dans les mêmes conditions (et en postulant pour le cadmium une répartition angulaire de neutralisation comparable à celle du palladium), la diffusion favorise la contagion par les isotopes plus légers. La fonction de contagion globale doit, au moins dans les cas extrêmes, refléter le caractère de la partie prépondérante. On constate, en effet, que sous très faible pression, (expérience 2), la contagion du "hash" étant maximum et la diffusion minimum, les facteurs de contagion par les isotopes 114 et 116 sont supérieurs respectivement aux facteurs de contagion par les isotopes 112 et 110. La situation est inversée dans le cas de l'expérience 1, où la pression est très élevée et, corrélativement, la diffusion plus grande et le "hash" moins efficace. Le diagramme de contagion de l'expérience 3, où la pression a une valeur intermédiaire, est à peu près symétrique.

Si l'on essaie de relever l'allure de la variation en fonction de la pression d'un facteur de contagion particulier, on obtient un résultat acceptable pour les isotopes plus légers (la variation en fonction de la pression est monotone croissante), mais non pour les isotopes plus lourds : existence d'un maximum pour une pression intermédiaire dans le cas du cadmium 116, incompatible avec l'allure théorique de la variation, qui est de la forme $\lambda p + \frac{\mu}{p}$, à intensité constante. Une vérification soigneuse des conditions expérimentales a montré que, dans l'expérience 3, l'intensité était près de deux fois supérieure à celle lors des deux premières séparations. Il n'est donc pas surprenant que le facteur de contagion du "hash" et, par voie de conséquence, le facteur de contagion global, ait eu une valeur un peu trop forte. La correction à apporter étant faible, l'observation précédente ne contredit pas la théorie.

Il n'en reste pas moins que cette dernière méthode est plus sensible aux fluctuations des conditions expérimentales que la méthode de comparaison employée précédemment, ainsi qu'il est déjà spécifié au chapitre I.

La quatrième collection est en principe comparable à la troisième au point de vue des conditions dans l'étage magnétique. La fonction de contagion est la somme de la contagion par diffusion sans variation d'état de charge et de la contagion du "hash". La première est symétrique, la seconde favorise les isotopes plus lourds ; la fonction globale favorise les isotopes plus lourds de façon assez modérée.

La cinquième collection démontre l'influence directe de l'instabilité de la source sur le niveau de la contagion et sur la prépondérance de la contagion par les isotopes plus lourds. La contagion par le cadmium-114 est extrêmement élevée. On remarquera que la contagion par les isotopes 110 et 116 est très réduite.

B) Expériences d'Orsay.

Le fait que la loi de variation du C_b en fonction de la pression n'est pas l'inverse de la pression ne limite pas forcément la validité du schéma global. En effet, la loi de variation en fonction de la pression du temps de neutralisation de la charge d'espace n'est bien l'inverse de la pression que si la composition de l'atmosphère résiduelle est bien constante. Or, dans les expériences d'Orsay, la pression était ajustée par injection d'argon dans la chambre et il est loin d'être évident que les rapports des sections efficaces d'ionisation par les électrons lents de la jauge d'ionisation et par les ions de cadmium de 30 keV, soient les mêmes pour l'argon injecté et pour l'atmosphère résiduelle de la chambre.

La contagion liée à l'ouverture n'est pas nécessairement un phénomène nouveau, mais la conséquence pure et simple du premier mode d'action de la charge d'espace (fig. 22). L'observation de ce phénomène fournit, néanmoins, un mode d'action pratique, probablement très efficace pour la diminution des facteurs de contagion liés au "hash".

A ce propos, il sera vraisemblablement indiqué de placer les diaphragmes d'ouverture en arrière et non en avant de la fente de sortie du premier étage.

Les expériences de la cascade magnétique se distinguent par leur rapidité et leur souplesse. L'essentiel des résultats d'Orsay a été obtenu en moins d'une journée, alors que les expériences de Saclay se sont échelonnées sur deux mois environ. Il n'est donc pas surprenant que des faits nouveaux aient pu être mis en évidence.

Il est également possible d'étudier directement la variation des facteurs de contagion individuels, au lieu de procéder par comparaison, compte tenu de la rapidité des mesures.

Conclusion du chapitre VI.

Le schéma global de contagion isotopique, formulé et explicité dans la première partie du chapitre, est confirmé, en tous points, par le résultat des expériences de contrôle.

CONCLUSION

L'origine et la nature de la contagion isotopique sont maintenant claires : si l'on met à part un certain nombre de mécanismes que l'on peut pallier spécifiquement avec une efficacité pratiquement totale, la contagion isotopique se résume à la compétition entre la diffusion des faisceaux accélérés sur le gaz résiduel du séparateur et la perte de résolution due à un résidu aléatoire de charge d'espace, lui-même provoqué par l'instabilité naturelle des sources d'ions à arc dans un champ magnétique. Ces deux mécanismes ne peuvent être corrigés simultanément, car les exigences concernant la pression requises pour leur disparition sont contradictoires.

Il est maintenant facile de comprendre certains faits rencontrés dans l'exploitation des séparateurs d'isotopes : par exemple, l'existence d'un optimum de pression et la valeur plus grande de la contagion par les isotopes plus lourds. Il est possible de préciser les conditions expérimentales, en fonction du résultat à obtenir : par exemple, on peut choisir la pression de fonctionnement par rapport à l'isotope particulier dont la présence est le plus indésirable.

La distinction entre contagion éloignée et contagion rapprochée peut être abandonnée dès lors que la nature des mécanismes est connue.

L'application du schéma de contagion isotopique aux cascades magnétiques et aux cascades triples montre que l'efficacité de ces appareils est extrêmement élevée au point de vue de la réduction de la contagion isotopique. Toutefois, il convient de remarquer que les meilleures performances ne seront atteintes que par un mode opératoire très précis, et que les défaillances de l'appareillage et celles des opérateurs peuvent devenir les limitations principales de la méthode.

Les résultats de l'exploitation de la cascade mixte ouvrent la voie à une nouvelle classe d'applications des isotopes séparés. Les perspectives ouvertes par le calcul des performances des cascades magnétiques et triples semblent au-delà des besoins actuels en matière de pureté isotopique, mais peuvent faire face à de nouveaux besoins et même en susciter.

Entant qu'instrument d'investigation, la supériorité de la cascade magnétique a été prouvée de façon éclatante par les dernières expériences d'Orsay, beaucoup plus courtes et significatives que celles de Saclay. Cependant, cette situation n'a été rendue possible que par la réfutation préalable directe du chromatisme en tant que mécanisme de contagion isotopique. Cette réfutation ne pouvant être faite valablement que par un analyseur d'énergie, le travail sur la cascade mixte est une étape indispensable dans les recherches sur la contagion isotopique.

Les constatations les plus récentes concernant l'ouverture angulaire des faisceaux produisant la contagion liée au résidu aléatoire de charge d'espace, ouvrent la voie à de nouveaux progrès qui semblent devoir être obtenus très simplement.

L'analyse a été facilitée par l'abandon de la notion conventionnelle de coefficient d'enrichissement et l'adoption de la notion de facteur de contagion, à cause de la propriété d'additivité qui lui est attachée et l'emploi d'une méthode de comparaison, parente de la méthode de dilution isotopique, qui permet d'exploiter les résultats d'expériences peu reproductibles.

Le présent travail a constitué le premier tour d'horizon cohérent sur la contagion isotopique.

Commencé au Service de Physique Nucléaire du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, ce travail a été terminé dans le cadre de la Section des Réactions Nucléaires à Basse Energie.

J'exprime mes remerciements au Commissariat à l'Energie Atomique qui m'a consenti les moyens matériels nécessaires.

Je remercie Monsieur le Professeur Perrin, Haut Commissaire, qui m'a autorisé à présenter ce mémoire comme thèse de doctorat et, également, à distraire une part importante de l'activité du Groupe de Séparation d'Isotopes dans la phase finale.

Monsieur Debiesse, Directeur du C.E.N. de Saclay a su me persuader efficacement de hâter la conclusion et la présentation.

Monsieur Berthelot, Chef du Service de Physique Nucléaire à l'époque où ce travail fut commencé, m'a autorisé à l'entreprendre, bien que le sujet n'ait que peu de rapport avec les sujets habituellement traités en Physique Nucléaire.

Monsieur Cotton, Chef de la Section des Réactions Nucléaires à Basse Energie, a assisté à la conclusion de ce travail et l'a amicalement encouragée.

Je leur exprime mes remerciements sincères.

Monsieur R.H. Bernas, maître de recherches au C.N.R.S., auteur de travaux importants sur la Séparation Electromagnétique des Isotopes, m'a permis d'utiliser ses installations du Laboratoire de la Faculté des Sciences à Orsay, pour une série d'expériences d'enjeu capital. J'ai eu l'occasion de souligner à quel point cette collaboration a été fructueuse. Je remercie, en outre, Monsieur Bernas, pour sa participation à ces expériences, ainsi qu'à l'interprétation des résultats.

Je remercie Monsieur le Professeur Teillac, Directeur du Laboratoire de Physique Nucléaire d'Orsay, qui a accordé l'autorisation nécessaire.

Au cours de discussions, Monsieur Nief m'a aidé à fixer quelques ordres de grandeur concernant les intensités employées en spectrographie de masse à haute résolution. Il a ainsi démontré que le deuxième mode d'action de la charge d'espace ne pouvait, comme je l'avais supposé, être invoqué pour expliquer les divergences constatées entre les échelles de masses exactes déterminées par spectrographie de masse et par mesure de l'énergie des réactions nucléaires. Je lui sais gré d'avoir réfuté une hypothèse trop hâtive.

Mademoiselle Beydon a consenti, avec beaucoup d'obligeance, à me décharger du souci des opérations chimiques. Je l'en remercie sincèrement, après tant d'autres.

Les analyses isotopiques d'éléments stables ont été faites principalement au laboratoire de spectrométrie de masse de la Section des Isotopes Stables. Je remercie Monsieur Griboval du temps qu'il a dû y consacrer et du soin qu'il a apporté aux mesures.

Je remercie Madame Olkowsky et Monsieur Cohen, de la Section des Réactions Nucléaires à Moyenne Energie, qui ont mesuré les abondances isotopiques d'uranium par spectrométrie α et m'ont permis de donner mon premier résultat significatif.

Madame Gugenberger s'est chargée de la mise en forme et de la première réalisation matérielle du mémoire. Je lui exprime, ainsi qu'à ses collaboratrices, ma profonde gratitude pour leur concours inappréciable.

Je remercie Monsieur Guilloux, Chef du Service de Documentation du C.E.N. de Saclay qui a assuré l'édition définitive et Monsieur Crémieu-Alcan qui, par ses interventions personnelles auprès de l'imprimeur a réduit les délais au minimum.

Enfin, bien que ne pouvant citer aucun nom, je suis redevable à tous les membres du Groupe de Séparation des Isotopes, à des titres divers, pour le concours efficace qu'ils m'ont apporté à tout instant et leur collaboration à la fois intelligente et active.

BIBLIOGRAPHIE

- 1 - H.D. SMYTH - Atomic energy for military purposes, Princeton University Press, 1945.
- 2 - A. GUTHRIE et R. WAKERLING - The characteristics of electrical discharges in magnetic fields. Mac Graw-Hill, New-York, 1949.
- 3 - R. WAKERLING et A. GUTHRIE - Electromagnetic separation of isotopes in commercial quantities, T.I.D. 5217, 1949.
- 4 - R. BERNAS - Thèse, Paris, 1954.
- 5 - R.H. DAWTON - Electromagnetically Enriched Isotopes and Mass Spectrometry. Proceedings of the conference held in the Cockroft Hall, Harwell, 1955 ; edited by M.L. Smith ; London, Butterworths Scientific Publications, p.208.
- 6 - R. BERNAS, J. BEYDON et L. PAPINEAU - C.R., 1954, 238, 791.
- 7 - C. CASSIGNOL - J. Phys. Radium, 1956, 17, n° 11, 113A-115A.
- 8 - M.L. SMITH - Proceedings of the International Symposium on Isotope Separation, Amsterdam, 1957, p.581.
- 9 - INGRAM et HAYDEN - Nuclear sciences series, report n° 14.
- 10 - C. CASSIGNOL, R. GELLER et J. MOREAU - Le Vide, 1953, n° 48, 1415.
- 11 - R. BERNAS, L. KALUSZYNER et J. DRUAUX - J. Phys. Radium, 1954, 15, 273.
- 12 - SPIGHEL - J. Phys. Radium, 1950, 11, 764.
- 13 - HUGHES et ROJANSKY - Phys. Rev., 1929, 34, 284.
- 14 - L. CARTAN - J. Phys. Radium, 1937, 8, 454.
- 15 - BARBER - Proc Leeds Phil. soc., 1922, 2, 427.
- 16 - G. RANC - Electromagnetically Enriched Isotopes and Mass Spectrometry. Proceedings of the conference, p.62.
- 17 - C. CASSIGNOL, G. RANC et R. SALVAUDON - J. Phys. Radium, série appl., 1958, 19, n° 12, 150A-153A.
- 18 - MASSEY et BURHOP - Electronic and ionic impact phenomena, Clarendon Press, Oxford, 1952.
- 19 - SHERWIN - Phys. Rev., 1940, 57, 814.
- 20 - YEARIAN - J. Chem. Phys., 1940, 8, 24.
- 21 - KEENE - Phil. Mag., 1949, 40, 369.
- 22 - N.V. FEDORENKO - Zhurn. Tekh. Fiz., 1954, 24, n° 5, 769.
- 23 - N.V. FEDORENKO - Comptes-rendus de la Conference sur les Phénomènes d'Ionisation dans les Gaz, Venise, 1957, p. 295.
- 24 - C. CASSIGNOL, F. DANIEL, G. DELMAS et G. RANC - J. Phys. Radium, 1959, 20, 20-24.
- 25 - C. CASSIGNOL - Proceedings of the International Symposium on Isotope Separation, p.631.
- 26 - C. CASSIGNOL - C.R., 1958, 246, 1413.
- 27 - BRUCK - Electromagnetically Enriched Isotopes and Mass Spectrometry. Proceedings of the conference, p.238.
- 28 - T.I.D. - 5217, p.20.
- 29 - C. CASSIGNOL, P. LAZEYRAS et G. RANC - J. Phys. Radium, 1958, 19, n° 12, 147A-149A.
- 30 - T.I.D. - 5217, p.22.
- 31 - J.R. Mac NALLY et SKIDMORE - J. Opt. Soc. Am., 1957, 47, 863 L.
- 32 - R.S. LIVINGSTON et J.A. MARTIN - Proceedings of the International Symposium on Isotope Separation, p.610.
- 33 - ZWORYKIN et al. - Electron optics and the electron microscope, Wiley and sons, New-York, p.27.

TABLE DES MATIÈRES

	Pages
INTRODUCTION	3
CHAPITRE 1 : POSITION DU PROBLEME	5
I. L'isotopie	5
II. Principe de la séparation électromagnétique des isotopes	5
A. Généralités	5
B. Cinématique des particules chargées	5
C. Focalisation des angles	6
D. Aberration angulaire	6
E. Dispersion et résolution théoriques	6
III. La contagion isotopique	7
A. Définition	7
B. Diagramme de contagion	7
C. Contagion éloignée et contagion rapprochée	8
IV. Instrumentation et réglage	8
V. Du choix d'une méthode	9
CHAPITRE 2 : L'ETAGE ELECTROSTATIQUE	11
I. Principe de la méthode	11
II. Description de l'appareil	11
III. Mise au point et résultats	13
IV. Commentaires sur l'instrumentation	14
V. L'étage électrostatique considéré comme outil d'investigation	15
CHAPITRE 3 : LE SCHEMA DE CONTAGION ISOTOPIQUE ELOIGNEE	17
1ere PARTIE. Description de quelques mécanismes banals, expériences préliminaires, hypothèses, réfutation du chromatisme	17
I. Les mécanismes banals	17
A. La contagion par l'élément naturel	17
B. Le rebondissement	17
C. La contagion provenant d'une résolution insuffisante	18
D. La contagion due aux claquages	18
II. Les autres mécanismes de contagion	18
A. Diffusion	18
B. Chromatisme	18
III. Quelques expériences faites au moyen de la cascade mixte	19
IV. Réfutation du chromatisme et du trainage d'énergie en tant que mécanismes de contagion isotopique	19

	Pages
2ème PARTIE. La diffusion, cause prépondérante de la contagion isotopique éloignée	20
I. Généralités sur la diffusion	20
II. Premier schéma de contagion isotopique	20
III. Insuffisance du schéma précédent	21
IV. Mesure de la répartition angulaire de la diffusion avec échange de charge par des atomes d'argon, d'ions positifs d'argon-40 de palladium-108 et d'uranium-238 d'énergie égale à 30 keV, et de charge unitaire	21
A. Principe de la méthode et description de l'appareillage	22
B. Mode opératoire	23
V. Commentaires et discussion	28
CHAPITRE 4 : EXPLOITATION DU SCHEMA DE CONTAGION ISOTOPIQUE ELOIGNEE ...	31
I. L'influence de la pression	31
II. L'influence des paramètres géométriques	31
A. Règles d'homothétie	33
B. Influence des paramètres géométriques quand la distribution angulaire de diffusion est infiniment pointue	33
C. Influence des paramètres géométriques dans le cas d'une distribution angulaire très large	34
III. Les cascades mixtes	34
IV. Les perspectives des cascades de monochromateurs	35
CHAPITRE 5 : LA CONTAGION RAPPROCHEE	37
I. L'éclatement des faisceaux d'ions	37
A. Réalité du phénomène et observation de phénomènes voisins	37
B. Le résidu aléatoire de charge d'espace	38
C. Influence de la pression	39
II. Etude expérimentale de l'influence de la pression et de la stabilité de la source sur la résolution des séparateurs d'isotopes	39
III. Commentaires sur les expériences et les hypothèses précédentes	41
A. Réfutation du chromatisme des sources instables	41
B. Mécanismes d'intervention de la charge d'espace	42
IV. La contagion isotopique due au "hash"	43
CHAPITRE 6 : LE SCHEMA GLOBAL DE CONTAGION ISOTOPIQUE	45
I. Formulation et exploitation du schéma global	45
A. Influence de la pression pour un appareil isolé	45
B. Les cascades mixtes	45
C. Les cascades magnétiques	46
II. Les expériences de contrôle du schéma global de contagion isotopique	47
A. Expériences de Saclay	47
B. Expériences d'Orsay	48
III. Commentaires sur les expériences de contrôle	50
A. Expériences de Saclay	50
B. Expériences d'Orsay	50
CONCLUSION	53
BIBLIOGRAPHIE	55

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

"L'action des collisions sur l'élargissement Doppler des raies spectrales".

Vu et approuvé :

Paris, le 17 avril 1959

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

J. PERES

VU

et Permis d'imprimer :

Le Recteur de l'Académie
de Paris,

Jean SARRAILH

IMP. LOUIS-JEAN — GAP

Dépôt légal n° 77 — 1959

